Vielteilchensimulation von Atomclustern in intensiven Laserfeldern

Von der Fakultät für
Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften
der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen
zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften genehmigte Dissertation

vorgelegt von
Diplom-Physiker Ludwig Johannes Arndt

aus Köln

Berichter: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Hans-Jörg Kull
apl. Prof. Dr. rer. nat. Rudolf Schmitz

Tag der mündlichen Prüfung: 18. Dezember 2006

Diese Dissertation ist auf den Internetseiten der Hochschulbibliothek
online verfügbar.

Many-Body Simulation of Atomic Clusters in Intense Laser Fields

English Summary

The interaction of atomic clusters with short, intense laser pulses has attracted both theoretical and experimental attention during the past decade. Experimental results indicate a more efficient transfer of laser energy into cluster matter as compared to gases and solids. These results include production of energetic electrons, XUV radiation and X-rays, highly charged energetic ions and neutrons from nuclear fusion Theoretical explanations of these findings are based on different approaches, many of which rely on the model of a cluster as a spherical plasma, which was developed by T. Ditmire *et. al.*. Accordingly several concepts familiar from plasma physics and strong field atomic physics are applied. Absorption by outer ionization, induced inverse bremsstrahlung, collisionless processes and linear and nonlinear dipole oscillations have been discussed.

In this thesis the interaction of large atomic clusters consisting of more than 1000 atoms with laser pulses in the 10-100 fs regime and of intensities ranging from 10^{15}W/cm^2 to 10^{18}W/cm^2 is studied, with an emphasis on laser pulse absorption by outer ionization and the resulting electron and ion energy spectra.

The cluster is described as an ideal collisionless plasma. The dynamics of the system is examined in the framework of a classical particle simulation. Pairwise particle interactions are calculated using a multipole approximation scheme developed in astrophysics which is known as a "tree code".

Examination of free and laser driven collective electron oscillations shows that the Mie resonance can be excited due to ion expansion during the laser pulse. This resonance manifests itself by a jump in the relative phase between the laser field and the electron velocity.

It is found that the cluster charge and the maximum kinetic energy of the ions are related linearly. Screening of the potential inside the expanding cloud of free electrons can be identified.

Exact electrostatic equilibria of electrons residing inside the cluster are derived in the context of outer ionization. Based on these equilibria an analytic description of the outer ionization degree for immobile ions is found. This description is extended to the case of expanding ions. The laser amplitude required for complete outer ionization is greatly reduced in this case.

Energy distributions of the electrons are classified according to the existence of a broad

plateau for low laser intensity which does not occur for high laser intensity. The plateau reaches up to three times the quiver energy of an electron in the laser field. The case of high laser intensity is treated in the framework of a quasistatic model known from multiphoton ionization of atoms in strong laser fields.

Vielteilchensimulation von Atomclustern in intensiven Laserfeldern

Deutsche Kurzfassung

Die Wechselwirkung atomarer Cluster mit kurzen, intensiven Laserpulsen zieht seit einem Jahrzehnt große experimentelle und theoretische Aufmerksamkeit auf sich. Experimentelle Ergebnisse deuten auf eine im Vergleich mit Festkörpern und Gasen sehr effiziente Einkopplung der Laserenergie in die Materie hin. Zu diesen Ergebnissen zählen die Produktion von energetischen Elektronen, Ultraviolett- und Röntgenstrahlung, hoch geladenen energetischen Ionen und Neutronen aus der Kernfusion. Zur Erklärung dieser experimentellen Befunde existieren verschiedene Ansätze, die zum großen Teil auf der von T. Ditmire *et. al.* entwickelten Modellierung des Clusters als Plasma beruhen. Dementsprechend finden auf diesem Gebiet viele Konzepte aus der Plasma- und Atomphysik starker Laserfelder Anwendung. Absorption durch äußere Ionisation, induzierte inverse Bremsstrahlung, stoßfreie Prozesse und die lineare und nichtlineare Dipolschwingung wurden untersucht.

Gegenstand dieser Arbeit ist das Studium der Wechselwirkung großer Cluster mit mehr als tausend Atomen mit Laserpulsen der Dauer von $10 - 100$ fs und Intensitäten von $10^{15} - 10^{18}\mathrm{W/cm}^2$. Der Schwerpunkt liegt dabei auf der Absorption des Laserpulses durch die Ionisation des Clusters und den Energiespektren der emittierten Elektronen und Ionen.

Der Cluster wird als ideales, stoßfreies Plasma behandelt. Die Dynamik des Systems wird im Rahmen einer klassischen Teilchensimulation auf dem Computer untersucht. Die Wechselwirkung der Teilchen wird mit einer als "Tree-Code"bekannten Multipolentwicklung berechnet, die ihren Ursprung in der Astrophysik hat.

Bei der Untersuchung der freien und angeregten Dipolschwingung kann die Mie-Resonanz, welche der Cluster bei der Expansion der Ionen durchläuft, anhand eines Phasensprungs identifiziert werden.

Es wird ein linearer Zusammenhang zwischen Clusterladung und maximaler kinetischer Ionenenergie festgestellt. In der expandierenden Elektronenwolke tritt eine Abschirmung des vom Cluster erzeugten Potentials auf.

Im Zusammenhang mit der äußeren Ionisation im Laserpuls werden exakte Gleichgewichte des Modells bei angelegtem elektrischen Feld beschrieben. Diese Gleichgewichte liefern eine analytische Form des äußeren Ionisationsgrads bei starren Ionen, die sich auf bewegte Ionen erweitern läßt. Die Ionenbewegung senkt die zur vollständigen Ionisation des Clusters benötigte Laserfeldstärke erheblich.

Die Energieverteilungen der Elektronen können in zwei Klassen eingeteilt werden. Bei

kleiner Laserintensität besitzen die Spektren ein Plateau, das bis zur dreifachen Zitterenergie eines Elektrons im Laserfeld reicht. Im Fall hoher Intensität wird die resultierende Energieverteilung der Elektronen im Rahmen eines quasistatischen Modells aus der Atomphysik erklärt.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **1**

1.1 Cluster im intensiven Laserfeld 1

1.2 Modelle und Simulationen 2

1.3 Ziel dieser Arbeit 3

2 Modell und Simulation **5**

2.1 Das elektrostatische Clustermodell 5

2.1.1 Die Simulationsparameter 6

2.2 Die Teilchensimulation 8

2.3 Das Tree Code-Verfahren 11

2.3.1 Das Grundprinzip 11

2.3.2 Zerlegung der Ladungsverteilung 12

2.3.3 Berechnung der Multipolmomente 13

2.3.4 Feldberechnung 14

2.3.5 Integration der Bewegungsgleichung 16

2.4 Parallelisierung 18

3 Plasmadynamik **21**

3.1 Die kollektive Elektronenschwingung 21

3.2 Ionenexpansion 25

3.2.1 Energiespektrum der Coulomb-Explosion 27

3.2.2 Inhomogene Ionendichten 28

3.3 Expansion des Clusterplasmas 33

3.3.1 Elektronenexpansion 34

3.3.2 Ionenexpansion 36

3.4 Potentialabschirmung 40

3.5 Anregung der Dipolschwingung 44

4 Absorption im Laserfeld **49**
4.1 Absorption mit starren Ionen 50
4.1.1 Quasistatisches Gleichgewicht im Laserfeld 50
4.1.2 Externe Polarisation 54
4.1.3 Äußere Ionisation 56
4.1.4 Potentielle Energie 58
4.2 Einfluß der Ionenbewegung 59
4.3 Energieverteilung der Ionen 62
4.4 Energiespektren der Elektronen 66
4.5 Geschwindigkeitsverteilung 68
4.6 Elektronenspektren bei hoher Intensität 69
4.6.1 Das quasistatische Ionisationsmodell 69

5 Zusammenfassung **75**

A Dimensionslose Bewegungsgleichungen **79**

B Zur homogenen Ladungsdichte **81**

C Multipolentwicklung **83**
C.1 Translationsformeln 83

Kapitel 1

Einleitung

Mit der Erfindung des Lasers in den fünfziger und sechziger Jahren des letzten Jahrhunderts eröffnete sich der Physik eine Fülle von Forschungsgebieten. Insbesondere die Plasmaphysik profitiert erheblich von dieser Strahlungsquelle, da sie Erzeugung, Kontrolle und Untersuchung des Plasmazustands der Materie experimentell ermöglicht.

Die Entwicklung des als "Chirped Pulse Amplification"bekannten Verstärkungsverfahrens erlaubt die Erzeugung hochintensiver, extrem kurzer Laserpulse mit Leistungen von $10^{16} - 10^{21}\mathrm{W/cm^2}$ bei einer Pulsdauer von 10-100 fs [1]. Die effiziente Einkopplung dieser Energiedichten in Materie steht aber vor folgendem grundsätzlichen Problem: In verdünnten Gasen läuft die Wechselwirkung wegen der geringen Dichte nahezu stoßfrei ab, und deshalb besitzen sie ein geringes Absorptionsvermögen. Festkörper besitzen zwar eine deutlich höhere Elektronendichte, das im Laserfokus gebildete Plasma reflektiert aber die Strahlung, wenn die Dichte die kritische Dichte überschreitet. Bei der kritischen Dichte stimmen Plasma- und Laserfrequenz überein. Zudem wird aufgrund der hohen thermischen Leitfähigkeit der Elektronen ein Großteil der Energie in den Festkörper abgeleitet.

Um die Laserenergie effizient zu übertragen, muß das beschossene Material also einerseits eine hohe Elektronendichte besitzen und andererseits weniger als eine Laserwellenlänge ausgedehnt sein. An diesem Punkt kommen die atomaren Cluster ins Spiel, die bei einer Größe von wenigen Nanometern eine Elektronendichte ähnlich der von Festkörpern besitzen.

1.1 Cluster im intensiven Laserfeld

Bei der adiabatischen Expansion von Edelgasen bilden sich unter geeigneten experimentellen Bedingungen durch die van der Waals-Kräfte zusammengehaltene Verbunde von einigen zehn bis mehreren Millionen Atomen, die als Cluster bezeichnet werden [2]. Zudem ist es

möglich, Metallcluster in Festkörper [3] oder Heliumtröpfchen [4] einzubetten.

Einer der wichtigsten Effekte beim Beschuß dieser Nanopartikel mit einem intensiven Laserpuls ist die vielfache Ionisation der Atome und der damit verbundene Aufbau einer großen Raumladung und einer hohen Spannungsenergie der Ionen, die diese dann auseinandertreibt. Während der Expansion der Ionen ist es möglich, die als Mie-Oszillation bekannte kollektive Dipolschwingung resonant anzuregen [5]. Dies konnte in kleinen Silberclustern unter Verwendung von zwei zeitlich verzögerten Laserpulsen nachgewiesen werden [6]. Inzwischen kann man diesen Prozess in Metallclustern gut kontrollieren [7]. Man findet zehn bis zwanzigfach geladene Silberionen, die Energie der emittierten Elektronen liegt jedoch im Bereich von wenigen 10 eV.

Beim Beschuß von Edelgasclustern aus mehreren tausend Atomen erreichen die Elektronen deutlich höhere Energien von 1-10 keV [8] bis zu 500 keV [9], [10]. Die Energieverteilung der Elektronen wird kontrovers diskutiert: in frühen Arbeiten [11] wurden zwei deutlich getrennte Elektronenpopulationen gefunden, die von anderen Gruppen nicht bestätigt werden konnten [8],[12],[13].

In Verbindung mit den hochenergetischen Elektronen emittieren Cluster bei der Wechselwirkung mit Laserpulsen Röntgenstrahlung, sowohl mit kontinuierlicher Verteilung [14], [15], [16] als auch in Form von Linienstrahlung [17]. Erstere liefert einen Hinweis auf Stoßprozesse der Elektronen mit den Clusterionen und damit verbundene Bremsstrahlungsemission, letztere wird auf die Anregung und Ionisation innerer Schalen in den Atomen zurückgeführt.

Auch die Expansion der Ionen kann explosionsartig verlaufen, die kinetische Energie der Ionen reicht von 100 keV bis zu 1 MeV [18],[19]. Asymmetrien in der Winkelverteilung der emittierten Ionen weisen darauf hin, daß die Expansion nicht radialsymmetrisch verläuft [12],[13].

Schließlich deuten die bei der Bestrahlung von Deuteriumclustern aufgefundenen Neutronen auf den effektiven Ablauf von Fusionsreaktionen hin [20],[21]. Ein großer Teil der durch die Coulomb-Explosion beschleunigten Deuteronen erreicht höhere Energien als 100 keV. Bei diesen Energien steigt die Fusionsrate deutlich an.

1.2 Modelle und Simulationen

Die Vorstellung, daß der Cluster eine winzige Plasmakugel, ein "Nanoplasma", bildet, wurde von T. Ditmire *et. al* entwickelt [22]. Aufgrund dieser Vorstellung wurden radialsymmetrische selbstkonsistente Modelle untersucht, die innere und äußere Ionisation und

die Heizung durch den Laser über Ratengleichungen und die Clusterexpansion hydrodynamisch beschreiben [22],[23]. Ein grundsätzlicher Nachteil der radialsymmetrischen Beschreibung liegt in der Unmöglichkeit, die vektorielle Natur der Lasereinkopplung in Form einer Dipolwechselwirkung einzubeziehen.

Diese Schwierigkeit tritt in mehrdimensionalen Teilchensimulationen nicht auf. Dazu gehören die Particle-In-Cell-Simulationen [24], [25], anhand derer die Laserabsorption und die Dynamik des Clusterplasmas untersucht wurden. Quantenmechanische Austausch- und Korrelationseffekte des Vielelektronensystems wurden im Rahmen der Thomas-Vlasov-Fermi-Molekulardynamik behandelt [26]. Die Stoßionisation der Clusteratome wurde mithilfe klassischer Molekulardynamik-Simulationen untersucht [27], [28]. Die Energieverteilung der emittierten Ionen wurde ebenfalls mit dieser Methode ermittelt [29]. Die Anregung nichtlinearer Dipolschwingungen wurde anhand eines Zwei-Teilchen-Modells simuliert [30],[31].

Den Teilchensimulationen gemein ist die numerisch aufwendige Berechnung der Wechselwirkungsfelder. Diese kann in der Particle-In-Cell-Methode für räumlich homogene Plasmen effizienter durchgeführt werden; bei Clustern liegt jedoch aufgrund ihrer geringen Ausdehnung eine stark inhomogene Ladungsverteilung vor. Um das Feld innerhalb des Clusters zuverlässig zu berechnen, muß das Gitter im gesamten Simulationsvolumen, welches viel größer als das Cluster sein muß, sehr engmaschig gewählt werden.

Einen Ausweg bietet das als Tree-Code bekannt gewordene Verfahren, welches ohne starres Gitter auskommt [32],[33]. Dieses Verfahren wurde zur Simulation von astrophysikalischen Problemen mit stark inhomogener Massenverteilung entwickelt. Auf Plasmen wurde es zur Untersuchung der inversen Bremsstrahlungsabsorption angewendet [34]. Die Grundidee besteht in der hierarchischen Unterteilung der Teilchenkonfiguration in Untergruppen benachbarter Teilchen. Bei kleinem Abstand wird die Wechselwirkung zwischen zwei Gruppen direkt, also durch Summation der Einzelfelder, berechnet; Bei genügend großem Abstand der Gruppen kann eine Multipolentwicklung des Potentials verwendet werden. Effektiv reduziert dies die zur Berechnung der Wechselwirkung von N Teilchen nötige Rechenzeit von $\mathcal{O}(N^2)$ auf $\mathcal{O}(N \log N)$ [32].

1.3 Ziel dieser Arbeit

Das Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung einer Tree-Code-Simulation zur Untersuchung der Wechselwirkung eines Edelgasclusters mit einem kurzen, intensiven Laserpuls. In Erweiterung des bestehenden Nanoplasma-Modells wird eine vollständige dreidimensionale

Beschreibung der stoßfreien Dynamik, basierend auf der Maxwell-Vlasov-Theorie, gewählt. Dabei werden sowohl die kinetische Entwicklung der Geschwindigkeitsverteilung als auch die nicht sphärisch symmetrische Laser-Plasma-Kopplung berücksichtigt.

Ein Schwerpunkt der Arbeit liegt auf der Untersuchung der Energieverteilungen von Ionen und Elektronen. Die Verwendung des Tree-Code-Algorithmus erlaubt eine deutlich größere Zahl von Simulationsteilchen als in früheren Arbeiten [35] und damit eine zuverlässige Bestimmung von Verteilungsfunktionen und Energiespektren. Weitere Untersuchungsgegenstände sind die kollektive Dipolschwingung, die Expansion des Clusters bei beweglichen Ionen [35] und die Absorption eines Laserpulses.

Die Arbeit ist wie folgt gegliedert: Im zweiten Kapitel wird die der Simulation zugrundeliegende klassische elektrostatische Beschreibung des Clusters vorgestellt. Das Tree-Code-Verfahren wird detailliert beschrieben. Es werden konzeptionelle und numerische Aspekte diskutiert. Die Integration der Bewegungsgleichungen der Simulationsteilchen wird knapp besprochen, weil die Methode bekannt ist.

Das dritte Kapitel ist größtenteils der Plasmadynamik ohne anregendes Laserfeld gewidmet. Es werden Simulationsergebnisse zur freien und angeregten Dipolschwingung, zur Ionenexpansion, zur Energieverteilung der Ionen und zur Debye-Abschirmung vorgestellt und diskutiert. Ein Teil der Effekte kann analytisch beschrieben werden.

Das vierte Kapitel beschäftigt sich mit der Absorption von Laserstrahlung durch das Clusterplasma. Es wird ein einfaches Modell zur äußeren Ionisation entwickelt und auf bewegliche Ionen erweitert. Zum Schluß werden die Ionen- und Elektronenspektren, die sich aus der Simulation ergeben, vorgestellt und diskutiert.

Kapitel 2

Modell und Simulation

Dieses Kapitel stellt das der Arbeit zugrundeliegende physikalische Modell des Clusters und die Methode der Computersimulation vor.

Der Cluster wird als elektrostatisch wechselwirkendes ideales Plasma im Rahmen der Maxwell-Vlasov-Theorie beschrieben. Als wesentliche Parameter gehen der Clusterradius, der mittlere Ionisationgrad der Clusteratome und ihre Anzahl ein. Zur Simulation des Systems wird das Plasma in Simulationsteilchen mit regularisierter Coulomb-Wechselwirkung, ähnlich zum Particle-In-Cell-Verfahren [36], eingeteilt. Die klassischen Bewegungsgleichungen dieser Teilchen werden numerisch integriert. Die Wechselwirkung wird mittels einer Baumstruktur, die eine systematische Multipolentwicklung durchführt, berechnet. Das Verfahren trägt den Namen "Tree Code".

2.1 Das elektrostatische Clustermodell

Bei der Wechselwirkung eines atomaren Clusters mit einem intensiven Laserpuls laufen verschiedene Mechanismen ab. Sie lassen sich anhand der zugehörigen Zeitskalen klassifizieren.

Elektronische Übergänge in den Clusteratomen laufen auf der atomaren Zeitskala $t_a = 24.2 \cdot 10^{-18} s$ ab. Eine mikrodynamische Simulation dieser Prozesse erfordert die Lösung der Schrödingergleichung eines Systems aus mehreren tausend Elektronen über die Dauer eines Laserpulses und ist damit numerisch sehr aufwendig.

Die in Experimenten mit Clustern verwendeten Laser besitzen meist optische Wellenlängen im Bereich eines Mikrometers. Die Dauer einer einzelnen Laserperiode liegt in der Größenordnung $t_L = \lambda_L / c \approx 3 \cdot 10^{-15} s$.

Zur kollektiven Dynamik des Systems aus Ionen und Elektronen gehört die Plasmafrequenz der Elektronenschwingung. Bei einer für Cluster typischen Elektronendichte von

$10^{23}/\mathrm{cm}^3$ beträgt die entsprechende Zeitskala $t_p = \sqrt{m_e/(4\pi e^2 n_e)}/2\pi \approx 3.5 \cdot 10^{-16} s$. Die Zeitskala der Ionendynamik erhält man, wenn man hierin die Elektronen- durch die Ionenmasse ersetzt; für Wasserstoff ergibt das $1.4 \cdot 10^{-14} s$.

Die längste Zeitskala ist die Dauer eines Laserpulses, welche in Experimenten in der Größenordnung von zehn Femtosekunden bis zu Pikosekunden liegt.

Diese Abschätzung zeigt, daß die typischen Zeiten der Plasmadynamik mit der Pulsdauer des Lasers zusammenfallen, während die atomare Dynamik auf einer deutlich schnelleren Skala abläuft. Es liegt also nahe, sich den Cluster als eine kleine Plasmakugel vorzustellen, deren Zeitentwicklung rein klassisch beschrieben wird. Atomare Prozesse werden nicht berücksichtigt. Dies schränkt die Anwendbarkeit des Modells auf große Cluster mit mehr als tausend Atomen ein, deren detaillierte Struktur bei der Wechselwirkung mit einem intensiven Laserpuls eine untergeordnete Rolle spielt. Experimentell werden solche Cluster zumeist aus Edelgasen hergestellt.

Die Befreiung eines Elektrons aus dem Atompotential findet bei Anregungsenergien oberhalb des Ionisationspotentials in der ansteigenden Flanke einer einzelnen Laserperiode, also innerhalb der Zeitspanne $t_L/4$, statt. Deshalb wird angenommen, daß sich die Clusteratome in einem mittleren zeitlich konstanten Ionisationszustand Z befinden, der sich in den ersten Zyklen des Laserpulses einstellt.

Bei ausreichend hohen Elektronentemperaturen im Cluster kann die Näherung des idealen, stoßfreien Plasmas verwendet werden. Entscheidend für die Verwendung dieser Näherung ist die Größe des Plasmakopplungsparameters

$$\Gamma = \frac{e^2}{r_s T_e}, \tag{2.1}$$

wobei r_s den mittleren Elektronenabstand und T_e die Elektronentemperatur darstellt. Für $\Gamma \ll 1$ können Plasmen als stoßfreie ideale Gase behandelt werden. Bei einer für Cluster typischen Dichte von $10^{23}/\mathrm{cm}^3$ und Temperatur von 100 eV gilt $\Gamma \approx 0.11 < 1$, was diese Näherung gestattet.

2.1.1 Die Simulationsparameter

Die Beschreibung des Clusters als elektrostatisch wechselwirkende Plasmakugel legt die Verwendung eines angepaßten Einheitensystems nahe. Die skalierten Bewegungsgleichungen sind im Anhang angegeben. Hier sollen kurz die wichtigsten Größen und ihre physikalische Bedeutung erläutert werden. Um ein bestimmtes Cluster auf das Modell abzubilden, benötigt man seinen Radius R_c und die Anzahl N_a der in ihm enthaltenen Atome. Da

die innere Ionisation nicht beschrieben wird, muß man zusätzlich einen mittleren Ionisationsgrad Z der Atome wählen. Aus diesen Informationen erhält man die elektrostatische Spannungsenergie der Ionenkugel (siehe Anhang B)

$$U_c = \frac{3}{5}\frac{Z^2 e^2 N_a^2}{R_c}. \tag{2.2}$$

Diese Energie wird als Einheit für die Gesamtenergie des Systems benutzt. Wegen der quadratischen Abhängigkeit von der Zahl der Atome ist sie sehr groß: Ein typisches Xenon-Cluster enthält bei einem Radius von 3 nm ungefähr 1700 Atome, die bei einer Laserintensität von $10^{16}\mathrm{W/cm^2}$ eine mittlere Ladungszahl von $Z \approx 10$ erreichen. Dann beträgt die Energie U_c ungefähr 139 MeV. Dies zeigt, daß Cluster einen wesentlich größeren Teil der Laserenergie absorbieren können als einzelne Atome in Gasen. Ein weiterer wichtiger Parameter ist das elektrische Feld am Rand der Ionenkugel,

$$E_c = \frac{ZeN_a}{R_c^2}. \tag{2.3}$$

Für das angeführte Xenon-Cluster beträgt es $2.72 \cdot 10^{12}\mathrm{V/m}$, entsprechend der Laserintensität

$$I_c = \frac{1}{8\pi}E_c^2 \approx 9.8 \cdot 10^{17}\mathrm{W/cm^2} \tag{2.4}$$

In diesem Intensitätsbereich spielt die Plasmadynamik eine wesentliche Rolle; er liegt weit oberhalb der Ionisationsschwelle einzelner Atome. Dies rechtfertigt teilweise die Vernachlässigung der atomaren Ionisation in der Simulation.

Eine typische Einteilchenenergie ist die potentielle Energie eines Elektrons, das sich am Rand der Ionenkugel befindet:

$$E_{ele}^{max} = e\frac{ZeN_a}{R_c}. \tag{2.5}$$

Für das Xenon-Cluster erhält man $E_{ele}^{max} = 8.2$ keV. Elektronen mit einer kinetischen Energie von mehreren keV werden in Experimenten mit Clustern häufig beobachtet. Daß diese Energie drei Größenordnungen über dem Ionisationspotential von Wasserstoff liegt, trägt zur Rechtfertigung des klassischen Modellansatzes bei.

Der Laserpuls wird im Modell durch seine Amplitude, bezogen auf das Clusterfeld E_c, das Verhältnis seiner Frequenz zur Plasmafrequenz und seine Pulsdauer, die durch die Zahl der Laserperioden beschrieben wird, parametrisiert. Die hohe Intensität wird zur Zeit nur in kurzen Laserpulsen optischer Wellenlängen erreicht. Bei einer Elektronendichte von $10^{23}/\mathrm{cm^3}$ und einer Laserwellenlänge von 1064 nm beträgt das Verhältnis von Laser- zu Plasmafrequenz $\omega_L/\omega_p = 1/10$. Das Clusterplasma ist also überdicht. Die Pulsdauer

kann in Relation zur Ausdehnung der Ionen betrachtet werden: beträgt diese mehrere zehn Femtosekunden, entsprechend zehn bis hundert Perioden, so dehnen sich die Ionen während des Pulses deutlich aus.

2.2 Die Teilchensimulation

Die in dieser Arbeit entwickelte Simulation des Clusterplasmas basiert auf der Maxwell-Vlasov-Theorie eines stoßfreien Plasmas [37],[38]. Die Vlasov-Gleichungen beschreiben die Zeitentwicklung der Phasenraumdichten $f_i(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{v}, t)$ der Ionen und $f_e(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{v}, t)$ der Elektronen. Sie lauten

$$\frac{\partial f_e}{\partial t} + \boldsymbol{v} \cdot \frac{\partial f_e}{\partial \boldsymbol{x}} + \frac{1}{m_e} \boldsymbol{F}_e \cdot \frac{\partial f_e}{\partial \boldsymbol{v}} = 0 \quad \text{und} \tag{2.6}$$

$$\frac{\partial f_i}{\partial t} + \boldsymbol{v} \cdot \frac{\partial f_i}{\partial \boldsymbol{x}} + \frac{1}{m_i} \boldsymbol{F}_i \cdot \frac{\partial f_i}{\partial \boldsymbol{v}} = 0 \,, \tag{2.7}$$

wobei $\boldsymbol{F}_e$ und $\boldsymbol{F}_i$ die durch das selbstkonsistente Feld bestimmten Kräfte auf die Elektronen und Ionen darstellen. Diese Kräfte beinhalten zum einen die elektrostatischen Wechselwirkungen der geladenenen Teilchen und zum anderen die Wechselwirkung mit dem externen Laserfeld. Die durch die Teilchenströme induzierten Magnetfelder werden vernachlässigt: Es zeigt sich, daß die Bewegung der Teilchen innerhalb des Clustervolumens nichtrelativistisch erfolgt.

Ausgehend von den Phasenraumdichten der Ionen und Elektronen erfolgt die Entwicklung der Simulation analog zum bekannten Particle-In-Cell-Verfahren [36]: Die beiden Verteilungsfunktionen werden durch je J Simulationsteilchen dargestellt. Ladung Q und Masse M der Simulationsteilchen sind gegeben durch

$$M_e = \frac{m_e N_e}{J} \,,\; Q_e = \frac{-eN_e}{J} \quad \text{für Simulationselektronen und} \tag{2.8}$$

$$M_i = \frac{m_i N_i}{J} \,,\; Q_i = \frac{ZeN_i}{J} \quad \text{für Simulationsionen.} \tag{2.9}$$

Dabei ist Z der angenommene mittlere Ladungszustand der physikalischen Ionen, N_i ihre Anzahl und $N_e = ZN_i$ die Anzahl der Elektronen im Cluster.

Da die Intensität des angelegten Laserfeldes bis zu $10^{18}\mathrm{W/cm}^2$ variiert, werden für die Simulationsteilchen relativistische Bewegungsgleichungen verwendet. Diese lauten, ausgedrückt durch die Position $\boldsymbol{x}_k$, die Raumkomponenten $\boldsymbol{u}_k$ der Vierergeschwindigkeit und

den relativistischen Faktor γ_k für das k-te Teilchen:

$$M_k \frac{d\boldsymbol{u}_k}{dt} = Q_k \left(\boldsymbol{E}(\boldsymbol{x}_k) + \boldsymbol{E}_L(\boldsymbol{x}_k, t) + \frac{\boldsymbol{u}_k}{c\gamma_k} \times \boldsymbol{B}_L(\boldsymbol{x}, t) \right), \tag{2.10}$$

$$\frac{d\boldsymbol{x}_k}{dt} = \frac{\boldsymbol{u}_k}{\gamma_k}, \tag{2.11}$$

$$\gamma_k = \sqrt{1 + \frac{u_k^2}{c^2}}. \tag{2.12}$$

Das elektrische Feld $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{x}_k)$ am Ort des Teilchens wird von allen anderen Simulationsteilchen erzeugt, und $\boldsymbol{E}_L$ und $\boldsymbol{B}_L$ sind elektrisches und magnetisches Feld des angelegten Laserpulses.

Die Teilchen wechselwirken paarweise über das Coulombpotential. Im Rahmen der Näherung eines idealen Plasmas müssen harte Stöße ausgeschlossen werden. Dies geschieht durch Regularisierung des Wechselwirkungspotentials für kleine Abstände. Die im nächsten Teil beschriebene Multipolentwicklung kann nur für beliebig oft differenzierbare Potentiale durchgeführt werden, was eine stückweise definierte Funktion ausschließt. Hier wird die als "Soft-Core"-Potential bekannte Funktion

$$U(\boldsymbol{x}_i, \boldsymbol{x}_j) = \frac{Q_i Q_j}{\sqrt{(\boldsymbol{x}_i - \boldsymbol{x}_j)^2 + \epsilon^2}} \tag{2.13}$$

verwendet. Der Abschneideparameter ϵ spielt die Rolle des minimalen Stoßparameters. Er wird auf den mittleren Abstand der $2J$ Simulationsteilchen, die sich anfangs im Volumen $4\pi R_c^3/3$ des Clusters mit Radius R_c befinden, gesetzt:

$$(2J)\frac{4\pi}{3}\epsilon^3 = \frac{4\pi}{3}R_c^3 \;\Rightarrow\; \epsilon = (2J)^{-1/3} R_c. \tag{2.14}$$

Das regularisierte elektrostatische Potential und Feld am Ort des Simulationsteilchens lauten dann

$$U(\boldsymbol{x}_k) = \sum_{j \neq k} Q_j \frac{1}{\sqrt{(\boldsymbol{x}_k - \boldsymbol{x}_j)^2 + \epsilon^2}} \quad \text{und} \tag{2.15}$$

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{x}_k) = \sum_{j \neq k} Q_j \frac{\boldsymbol{x}_k - \boldsymbol{x}_j}{\sqrt{(\boldsymbol{x}_k - \boldsymbol{x}_j)^2 + \epsilon^2}^3}\ . \tag{2.16}$$

Diese Summen müssen für jedes Teilchen berechnet werden; das ergibt insgesamt $(2J)(2J-1)/2$ Terme und ist somit sehr aufwendig. In der Simulation werden die Wechselwirkungen durch Multipolpotentiale approximiert. Implementierung und Anwendung dieses Verfahrens stellen einen wesentlichen Teil dieser Arbeit dar; das nächste Kapitel beschreibt es genauer.

Der Laserpuls wurde immer linear in z-Richtung polarisiert und breitet sich immer in Richtung der x-Achse aus. Er wird durch Funktionen der Form

$$\boldsymbol{E}_L(x,t) = E_0 \boldsymbol{e}_z \, f(\omega_L t - k_L x) \tag{2.17}$$

dargestellt. Es gilt die Vakuum-Dispersionsrelation $\omega_L = c k_L$ für Laserfrequenz und -Wellenzahl. Gemäß den Maxwellgleichungen lautet das zugehörige Magnetfeld

$$\boldsymbol{B}_L(x,t) = -E_0 \boldsymbol{e}_y \, f(\omega_L t - k_L x). \tag{2.18}$$

Eine oft benutzte Funktion f ist der $\sin^2$-Puls mit n_L Zyklen,

$$f(\phi) = \sin^2\left(\frac{\phi}{2n_L}\right)\sin(\phi). \tag{2.19}$$

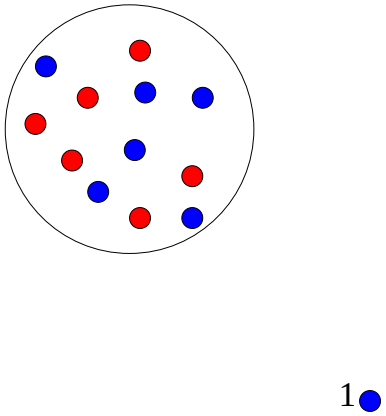


Abbildung 2.1: Beispielkonfiguration von Simulationsteilchen mit Ladung +1 (blau) und −1 (rot). Das Feld am Ort des Teilchens 1 soll berechnet werden.

2.3 Das Tree Code-Verfahren

Dieser Abschnitt beschreibt die Potential- und Feldberechnung in der Simulation. Wegen der großen Anzahl der Simulationsteilchen ist die direkte Berechnung der Paarwechselwirkungen sehr zeitaufwendig: für J Teilchen müssen $\sim J^2$ Wechselwirkungen ausgerechnet werden. Der hier angegebene Algorithmus wird wegen der zugrundeliegenden Baumstruktur als Tree Code bezeichnet. Er wurde von J. Barnes und P. Hut [33] zur Simulation astrophysikalischer Systeme entwickelt und unter anderen von P. Gibbon [32] auf die Plasmaphysik übertragen. Der Zeitaufwand zur Feldberechnung mit diesem Verfahren ist mit $J \log J$ [32] für große Teilchenzahlen deutlich geringer. Der Tree Code-Algorithmus wurde in Molekulardynamik-Simulationen [28] zur Untersuchung der Stoßionisation in Clustern benutzt. Abweichend vom Standardverfahren wird hier der Baumaufbau bei einer bestimmten Zellgröße abgebrochen, um die Effizienz zu erhöhen. Eine weitere Beschleunigung wird durch Parallelisierung der Simulation erzielt.

2.3.1 Das Grundprinzip

Man betrachte die in Abbildung 2.1 gezeigte Verteilung von einfach positiven und negativen Simulationsteilchen. Das elektrische Feld am Ort des Teilchens 1 soll berechnet werden; dazu wären die zwölf von den eingekreisten Teilchen erzeugten Felder aufzuaddieren. Offenbar ist aber der Abstand r des Teilchens 1 von der Teilchengruppe größer als deren Ausdehnung s. Das bedeutet, daß die Multipolentwicklung ihres Potentials zur Feldberechnung benutzt werden kann. Diese stellt eine Entwicklung in Potenzen von s/r dar. Für $s/r < 1$ werden

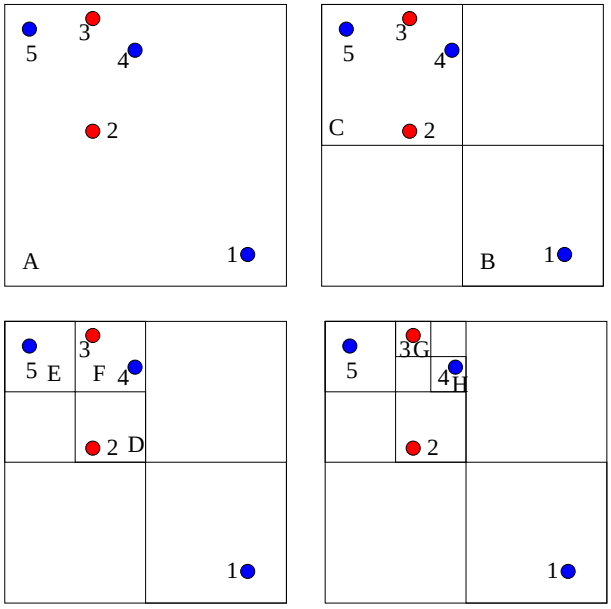


Abbildung 2.2: Die Ladungsverteilung wird rekursiv zerlegt, bis jede Zelle nur ein Teilchen erhält.

die Terme höherer Ordnung schnell kleiner, sodaß man zur Approximation des Potentials nur wenige Multipolmomente benötigt. Bei einer Entwicklung bis zum Quadrupolmoment treten statt der zwölf Einzelfelder lediglich drei Terme auf.

Diese Reduktion des Rechenaufwands wird im Tree-Code-Algorithmus systematisch durchgeführt. Er kann in drei Schritte aufgeteilt werden, die im folgenden einzeln beschrieben werden:

1. Zerlegung der Ladungsverteilung in Gruppen von benachbarten Teilchen;

2. Berechnung der Multipolmomente;

3. eigentliche Feldberechnung.

2.3.2 Zerlegung der Ladungsverteilung

Um die Ladungsverteilung in kleinere Untergruppen zu zerlegen, wird, siehe Abbildung 2.2, zuerst eine Wurzelzelle (A) angelegt, die die ganze Verteilung umfaßt. Anhand der Lage der Teilchen bezüglich der Zellmitte wird gezählt, wieviele Teilchen in den vier (in drei Dimensionen acht) Unterzellen der halben Größe fallen. Die besetzten Unterzellen (im Beispiel B und C) werden in einer Baumstruktur wie in Abbildung 2.3 gespeichert,

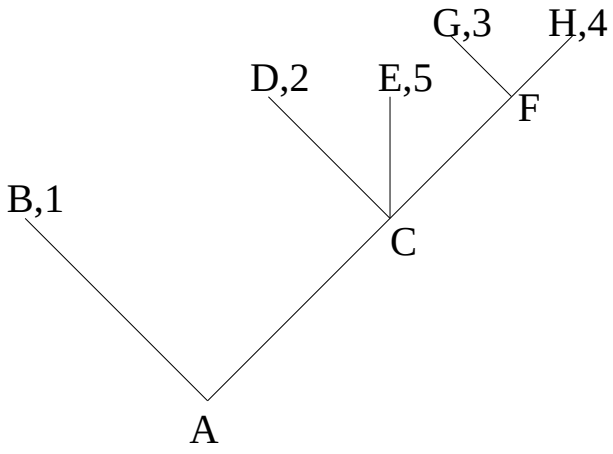


Abbildung 2.3: Baumstruktur, die sich aus dem Beispiel 2.2 ergibt.

welche die Zellen-Unterzellen-Beziehung kodiert. Im nächsten Schritt werden die Zellen, die mehr als ein Teilchen enthalten (im Beispiel Zelle C), weiter unterteilt. Neue Zellen werden im Baum an ihre Überzelle angehängt. Die Unterteilung wird solange durchgeführt, bis alle Zellen nur noch ein Teilchen enthalten. Im Beispiel werden zuletzt die Zellen G und H angelegt. Zusätzlich wird für jedes Teilchen die Zelle, in der es letztlich liegt, und umgekehrt, gespeichert. Zellen, die nur ein Teilchen enthalten, werden im folgenden Blätter genannt.

2.3.3 Berechnung der Multipolmomente

Die Multipolberechnung wird baumabwärts durchgeführt. Da die Blätter einzelne Teilchen enthalten, ergibt sich bei ihnen nur das Monopolmoment. Die für die Feldberechnung benötigte Position $\boldsymbol{x}_c$ der Zelle fällt mit dem Ort des in ihr enthaltenen Teilchens zusammen.

Die eigentliche Berechnung beginnt im Beispiel bei der Zelle F. Als Position der Zelle für die Feldberechnung und den Ursprung ihrer Multipolentwicklung wird das Ladungszentrum $\boldsymbol{x}_{coc}$ gewählt, welches ähnlich wie der Massenschwerpunkt berechnet wird: jedem Teilchen wird der Betrag seiner Ladung als fiktive Masse zugeordnet, also

$$A = \sum_i a_i = \sum_i |q_i| \tag{2.20}$$

$$\boldsymbol{x}_{coc} = \frac{1}{A} \sum_i |q_i| \boldsymbol{x}_i. \tag{2.21}$$

Es ist zu beachten, daß die Ladungsbeträge wie Massen aufsummiert werden. In Abbildung

2.2 besitzt etwa die Zelle C keine Gesamtladung; ihre Masse für das Ladungszentrum ist aber vier, wenn die Ladungsbeträge der Teilchen übereinstimmen.

Bei der Berechnung der Momente von tiefer im Baum liegenden Zellen lohnt sich die Verwendung der im Anhang angegebenen Translationsformeln für die Multipolmomente. Es muß nicht jedesmal über alle Teilchen in einer Zelle summiert werden, wenn die Momente der Unterzellen, in denen sie sich befinden, bekannt sind; stattdessen verschiebt man die Multipole der Unterzellen zum Ladungszentrum der Überzelle. Das lohnt sich besonders auf den unteren Niveaus des Baums, wo Zellen viele Teilchen enthalten.

Die Berechnung der Multipole wird bis zur Wurzelzelle durchgeführt, die dann eine Multipolentwicklung der gesamten Ladungsverteilung bezüglich des Gesamt-Ladungszentrums besitzt.

2.3.4 Feldberechnung

Zur Berechnung des elektrischen Feldes und Potentials am Ort eines Teilchens wird der Baum von der Wurzelzelle aus aufwärts durchlaufen. Für eine bestimmte Zelle wird das Verhältnis ihrer Seitenlänge s zum Abstand r des Teilchens von ihrem Ladungszentrum gebildet. Anhand des Öffnungsparameters Θ wird entschieden, ob die Zelle in ihre Unterzellen aufzulösen ist oder ob die Multipolentwicklung der Zelle zur Feldberechnung ausreicht:

- Für $s/r < \Theta$ wird die Multipolentwicklung akzeptiert. Damit ist die Berechnung des von den Teilchen in der Zelle erzeugten Feldes abgeschlossen. Man kann sich anderen Teilchengruppen zuwenden.

- Für $s/r \geq \Theta$ wird die Zelle in ihre Unterzellen aufgelöst. Die Feldberechnung wird auf dem nächsthöheren Baumniveau fortgeführt.

Der Öffnungsparameter Θ steuert also Genauigkeit und Geschwindigkeit der Feldberechnung. Setzt man $\Theta = 0$, so wird die Multipolentwicklung nie akzeptiert: in diesem Fall wird das Feld exakt berechnet. Da der Baum aber immer bis in die Blätter durchlaufen wird, ist das Verfahren sehr langsam. Mit wachsendem Θ werden die Multipolentwicklungen häufiger akzeptiert. Die Feldberechnung wird ungenauer, aber schneller. Werte größer als eins sollten für Θ nicht benutzt werden: dann kann es passieren, daß die Multipolentwicklung einer Zelle, die das Teilchen selbst enthält, akzeptiert wird, und es kommt zur unphysikalischen Selbstwechselwirkung. Ein sinnvoller Kompromiss zwischen Geschwindigkeit und Genauigkeit kann durch Ausprobieren verschiedener Werte für Θ gefunden werden.

Abbildung 2.4 zeigt das mit dem Tree Code-Verfahren ausgerechnete elektrische Feld eines zufällig mit positiven und negativen Teilchen gefüllten Quaders der Seitenlänge eins.

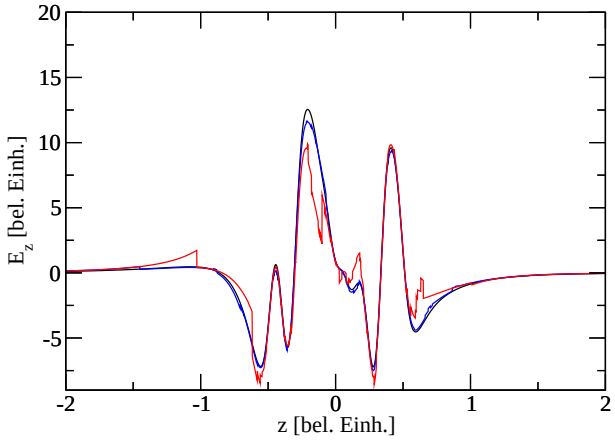


Abbildung 2.4: Elektrisches Feld zufällig verteilter positiv und negativ geladener Teilchen als Funktion des Ortes für $\Theta = 1$ (rot), $\Theta = 1/2$ (blau) und exakt (schwarz).

Der exakte Feldverlauf wird für $\Theta = 1/2$ (blau) gut wiedergegeben. In der Kurve für $\Theta = 1$ kann man lediglich den groben Verlauf erkennen. Die Unstetigkeiten (wie bei $z = -1$) treten an Stellen auf, bei denen für bestimmte Zellen die Öffnungsbedingung $s/R < \Theta$ auf $s/R \geq \Theta$ springt. Im Fall $\Theta = 1$ sind das für die Wurzelzelle der Größe eins die Orte $|z| \approx 1$, denn ihr Ladungszentrum liegt ungefähr im Ursprung.

Zur Abschätzung des numerischen Fehlers in der Feldberechnung wird die Verteilung der relativen Fehler

$$\frac{E_i^{tree}(\Theta) - E_i^{exakt}}{|E_i^{exakt}|} \tag{2.22}$$

der Teilchen betrachtet, wobei $i = x, y, z$ die Komponenten des Feldes am jeweiligen Teilchenort bezeichnet. Diese zeigt Abbildung 2.5 für 10000 homogen in einer Kugel verteilte positiv und negativ geladene Teilchen. Die rote Kurve entspricht dem Öffnungsparameter $\Theta = 1$ und besitzt eine Halbwertsbreite von 0.2. Die Halbwertsbreite der schwarzen Kurve zu $\Theta = 1/2$ beträgt 0.06. Die Zentren der Kurven liegen im Ursprung. Dies bedeutet, daß die Richtung des Fehlers gleichverteilt ist.

Eine wichtige Konsequenz der Feldberechnung mit dem Tree-Code-Verfahren ist die Verletzung der Impulserhaltung in dynamischen Simulationen. Diese folgt aus der nicht symmetrischen Kraftberechnung: im Allgemeinen ist das dritte Newtonsche Axiom verletzt.

Es sei angemerkt, daß in der Simulation der Baumaufbau nicht soweit betrieben wird, bis in jeder Zelle nur noch ein Teilchen liegt. Vielmehr wird der Aufbau abgebrochen, wenn die Zellgröße s den Regularisierungsparameter ϵ des Wechselwirkungspotentials unterschreitet. Dafür gibt es drei Gründe. Zum einen verliert die Multipolentwicklung für

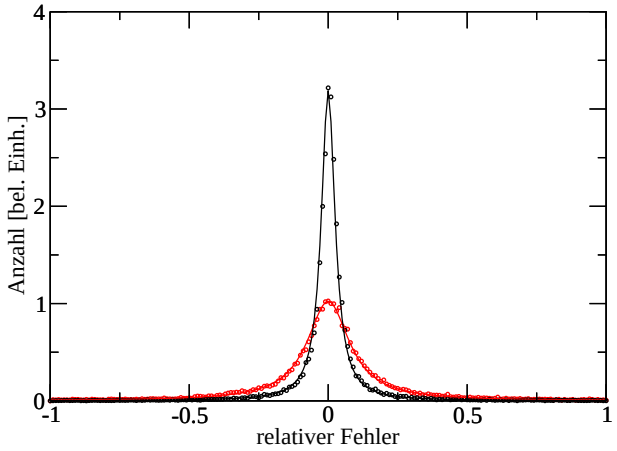


Abbildung 2.5: Verteilung des relativen Fehlers in den Komponenten des elektrischen Feldes für $\Theta = 1$ (rot) und $\Theta = 1/2$ (schwarz).

diese Abstände ihren Sinn, denn das Potential wächst in diesem Bereich mit dem Abstand; für $r < \epsilon$ und eine Zelle der Größe $s \sim \epsilon$ ist der Entwicklungsparameter $s/r = \epsilon/r$ größer als eins, und die Terme in der Multipolentwicklung wachsen mit ihrer Ordnung.

Zum zweiten ließen sich Konfigurationen, in denen sich je ein Elektron und ein Ion am gleichen Ort befinden, nicht mehr behandeln; solche Konfigurationen werden teilweise als Anfangsbedingungen verwendet.

Drittens verkürzt sich durch den Abbruch der Zerlegung die Rechenzeit, weil die Durchsuchung des Baums für wenige Teilchen länger dauert als die direkte Berechnung der Wechselwirkung.

Abbildung 2.6 demonstriert, daß die Wechselwirkung mit dem Tree-Code-Verfahren tatsächlich deutlich schneller berechnet wird. Die Zeit zur direkten Berechnung wächst quadratisch mit der Teilchenzahl, mit dem Tree-Code-Verfahren nur linear. Daß der Tree-Code-Algorithmus auch für kleine Teilchenzahlen ungefähr gleichschnell läuft, liegt am Abbruch des Baumaufbaus.

2.3.5 Integration der Bewegungsgleichung

Die Bewegungsgleichungen der Simulationsteilchen werden mit dem Leap-Frog-Algorithmus integriert. Verwendet wird die relativistische Version dieses Verfahrens, die das Magnetfeld des Lasers berücksichtigt [36]. Die Zeit wird in Schritte der Größe Δt unterteilt. Position und Geschwindigkeit werden um einen halben Zeitschritt versetzt betrachtet, sodaß das

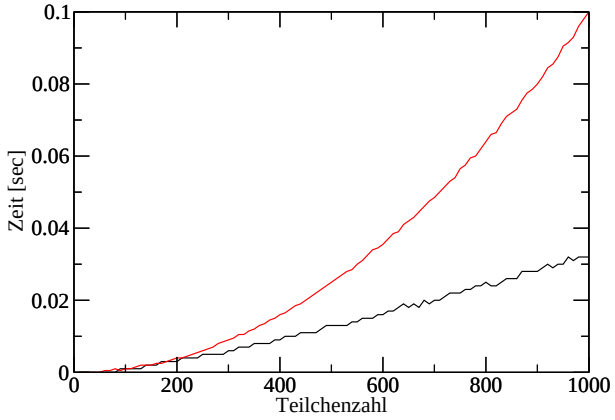


Abbildung 2.6: Zur Berechnung der Wechselwirkung benötigte Zeit für das direkte (rot) und das Tree-Code-Verfahren (Parameter $\Theta = 0.5$,schwarz) für verschiedene Teilchenzahlen.

Integrationsschema

$$\boldsymbol{x}(t+\Delta t) = \boldsymbol{x}(t) + \frac{\boldsymbol{u}(t+\Delta t/2)}{\gamma(t+\Delta t/2)}\Delta t \tag{2.23}$$

für die Position und

$$\frac{\boldsymbol{u}(t+\Delta t/2) - \boldsymbol{u}(t-\Delta t/2)}{\Delta t} = \frac{Q}{M}\left(\boldsymbol{E}(t) + \frac{\boldsymbol{u}(t+\Delta t/2) + \boldsymbol{u}(t-\Delta t/2)}{2c\gamma(t)} \times \boldsymbol{B}(t)\right) \tag{2.24}$$

für die Geschwindigkeit lautet. Die implizite Gleichung für die Geschwindigkeit muß nach $\boldsymbol{u}(t+\Delta t/2)$ aufgelöst werden. Dazu kann man den Algorithmus von Boris [36] verwenden. Zuerst wird die halbe Beschleunigung durch das elektrische Feld addiert, was die Zwischengeschwindigkeit

$$\boldsymbol{u}^- = \boldsymbol{u}(t-\Delta t/2) - \frac{Q\boldsymbol{E}(t)\Delta t}{2M} \tag{2.25}$$

ergibt. Die Gyrationsbewegung entspricht einer Rotation der Geschwindigkeit, die in zwei Stufen durchgeführt wird:

$$\boldsymbol{u}' = \boldsymbol{u}^- + \boldsymbol{u}^- \times \boldsymbol{t} \tag{2.26}$$

$$\boldsymbol{u}^+ = \boldsymbol{u}^- + \boldsymbol{u}' \times \boldsymbol{s}. \tag{2.27}$$

Dabei sind die Vektoren $\boldsymbol{t}$ und $\boldsymbol{s}$ definiert als

$$\boldsymbol{t} = \frac{Q\boldsymbol{B}\Delta t}{2\gamma(t)Mc} \quad \text{und} \quad \boldsymbol{s} = \frac{2\boldsymbol{t}}{1+\boldsymbol{t}^2}\ . \tag{2.28}$$

Der Faktor $\gamma(t)$ wird für die Geschwindigkeit $\boldsymbol{u}^-$ ausgewertet:

$$\gamma(t) = \sqrt{1 + (\boldsymbol{u}^-)^2/c^2}. \tag{2.29}$$

Die endgültige neue Geschwindigkeit erhält man aus

$$\boldsymbol{u}(t + \Delta t/2) = \boldsymbol{u}^+ + \frac{Q\boldsymbol{E}(t)\Delta t}{2M}. \tag{2.30}$$

Man berechnet also die Felder an der Teilchenposition $\boldsymbol{x}(t)$, daraus die neue Geschwindigkeit $\boldsymbol{u}(t + \Delta t/2)$ und setzt dann die Teilchenposition weiter. Da die Geschwindigkeiten gegenüber den Orten um einen halben Zeitschritt versetzt sind, müssen die kinetische Energie und der Faktor γ aus ihrem Mittelwert bestimmt werden.

Der numerische Fehler des Leap-Frog-Algorithmus ist von quadratischer Ordnung des Zeitschritts Δt und damit größer als beispielsweise beim Runge-Kutta-Verfahren vierter Ordnung. Er hat aber den Vorteil, daß pro Zeitschritt nur eine Berechnung der Kräfte benötigt wird; das Runge-Kutta-Verfahren benötigt die Kräfte zu vier Zwischenzeiten und damit die vierfache Rechenzeit. Da in der Simulation auch die Kräfte nicht exakt berechnet werden, ist zu erwarten, daß die bessere Genauigkeit des Runge-Kutta-Verfahrens bei der zeitlichen Integration nicht ausgenutzt werden kann. Der Geschwindigkeitsvorteil gibt den Ausschlag für die Verwendung des Leap-Frog-Algorithmus.

Der Zeitschritt Δt muß so gewählt werden, daß die Plasmaschwingung mit der Frequenz ω_p aufgelöst wird. Ein Maß dafür ist die Erhaltung der Gesamtenergie des Systems, wenn kein Laserfeld anliegt. Es wurde $\Delta t = (2\pi/\omega_p)/25$ gewählt, was einer Zerlegung der Plasmaperiode in 25 Integrationsschritte entspricht. Abbildung 2.7 zeigt die potentielle, die kinetische und die gesamte Energie des Systems bei der in Teil 3.1 beschriebenen freien Dipolschwingung. Über 100 Plasmaperioden kann man keine deutliche Abweichung der Gesamtenergie von ihrem Anfangswert erkennen.

2.4 Parallelisierung

Durch die Ausführung der Simulation auf einem Parallelrechner, in dem mehrere Prozessoren auf denselben Speicher zugreifen, kann eine weitere deutliche Beschleunigung erzielt werden. In folgenden Programmteilen müssen die gleichen Aufgaben für unterschiedliche Datensätze erledigt werden:

- Die Berechnung der Multipolmomente einer Zelle im Baum hängt nicht von den Momenten anderer Zellen auf dem gleichen Niveau ab.

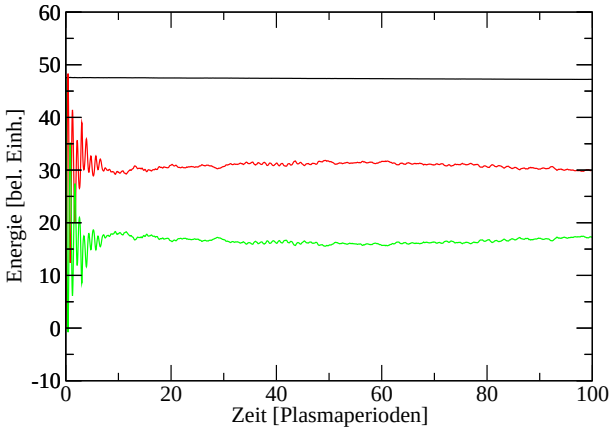


Abbildung 2.7: Potentielle (grün), kinetische (rot) und Gesamtenergie (schwarz) des Plasmas über 100 Plasmaperioden. Die Gesamtenergie ist nahezu konstant.

- Die Durchsuchung des Baums und die Feldberechnung kann für mehrere Teilchen gleichzeitig erfolgen, da der Baum nur ausgelesen, nicht beschrieben wird.
- Einzelne Integrationsschritte der Bewegungsgleichungen unterschiedlicher Teilchen hängen nicht voneinander ab.

Diese Rechenschritte können auf mehrere Prozessoren verteilt werden. Bei N_p Prozessoren erhielte man im Idealfalle eine Beschleunigung um den Faktor N_p. Nur der Baumaufbau selbst kann nicht direkt parallelisiert werden; diese Aufgabe benötigt aber eine im Vergleich zur Feldberechnung kurze Zeit, weil keine numerischen Berechnungen durchgeführt werden.

Kapitel 3

Plasmadynamik

Dieses Kapitel beschreibt die Dynamik der Elektronen und Ionen im Clusterplasma. Die kollektive Elektronenschwingung und die elektrostatische Expansion der Ionen wird untersucht. Das für eine Coulomb-Explosion typische Energiespektrum wird berechnet und seine Abhängigkeit von der Anfangsverteilung der Ionen untersucht.

Danach wird die zeitliche Entwicklung des Plasmas aus thermischen Anfangzuständen und die Abschirmung des Potentials durch Elektronen außerhalb des Clusters dargestellt.

Zum Schluß wird untersucht, inwiefern die kollektive Elektronenschwingung durch ein Laserfeld angeregt werden kann, und welche Rolle die Ionenexpansion dabei spielt. Es wurde gezeigt, daß diese Elektronenschwingung maßgeblich an der Erzeugung der hoch geladenen Ionen beteiligt ist [28],[39].

3.1 Die kollektive Elektronenschwingung

Die Ionen bilden im Plasmamodell des Clusters anfänglich eine homogene Kugel mit Radius R_c und Gesamtladung $Q_c = ZeN_a$. Das elektrostatische Potential dieser Kugel kann aus der Poissongleichung

$$\Delta\phi(r) = -4\pi\ n_i(r) \tag{3.1}$$

berechnet werden, wobei

$$n_i(r) = \frac{3Q_c}{4\pi R_c^3}\Theta(R_c - r) \tag{3.2}$$

die Ionenladungsdichte ist. Das Potential soll im Ursprung regulär sein und im Unendlichen verschwinden. Mit diesen Randbedingungen kann die Gleichung (3.1) integriert werden. Die Lösung lautet

$$\phi(r) = -\frac{Q_c}{R_c}\begin{cases} \frac{r^2-3R_c^2}{2R_c^2} & r < R_c \\ \frac{R_c}{r} & R \geq R_c \end{cases} . \tag{3.3}$$

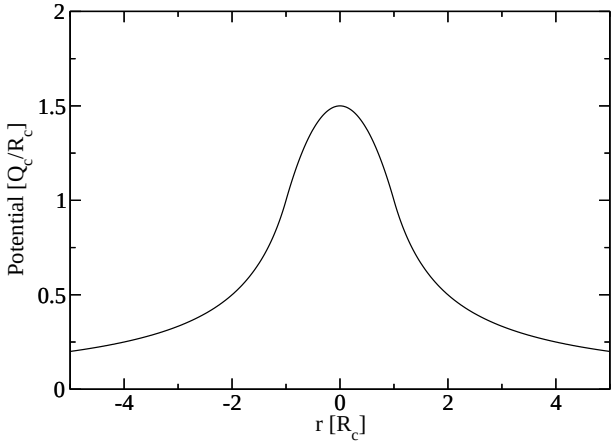


Abbildung 3.1: Elektrostatisches Potential der homogenen Ionenkugel.

Im Inneren der Kugel ist das Potential, siehe auch Abbildung 3.1, harmonisch.

Die Bewegungsgleichung des k-ten Simulationselektrons mit Ladung Q_e und Masse M_e lautet dann innerhalb des Clusters, wenn das elektrische Feld der restlichen Elektronen mit $\boldsymbol{E}_e$ bezeichnet wird[1],

$$M_e \ddot{\boldsymbol{x}}_k - Q_e \frac{Q_c}{R_c^3} \boldsymbol{x}_k - Q_e \boldsymbol{E}_e(\boldsymbol{x}_k) = 0. \tag{3.4}$$

Der Schwerpunkt der N_{in} Elektronen innerhalb des Clusters ist definiert als

$$\boldsymbol{X} = \frac{1}{N_{in}} \sum_{|x_k|<R_c} \boldsymbol{x}_k. \tag{3.5}$$

In seiner Bewegungsgleichung heben sich die Felder $\boldsymbol{E}_e(\boldsymbol{x})$ auf. Sie beschreibt einen harmonischen Oszillator

$$\ddot{\boldsymbol{X}} + \frac{|Q_e|}{M_e} \frac{Q_c}{R_c^3} \boldsymbol{X} = 0 \tag{3.6}$$

mit der Eigenfrequenz

$$\omega_m = \sqrt{\frac{|Q_e|}{M_e} \frac{Q_c}{R_c^3}} = \sqrt{\frac{e}{m_e} \frac{Q_c}{R_c^3}}. \tag{3.7}$$

Diese Frequenz wird als Mie-Frequenz bezeichnet. Ausgedrückt durch die Plasmafrequenz lautet sie

$$\omega_m = \frac{\omega_p}{\sqrt{3}}. \tag{3.8}$$

Die Oszillation des Elektronenschwerpunkts kann simuliert werden, indem man die Elektronen im Anfangszustand gegen die Ionenkugel verschiebt. Abbildung 3.2 zeigt einen solchen

[1]Man beachte, daß die Ladung Q_e *negativ* definiert wurde.

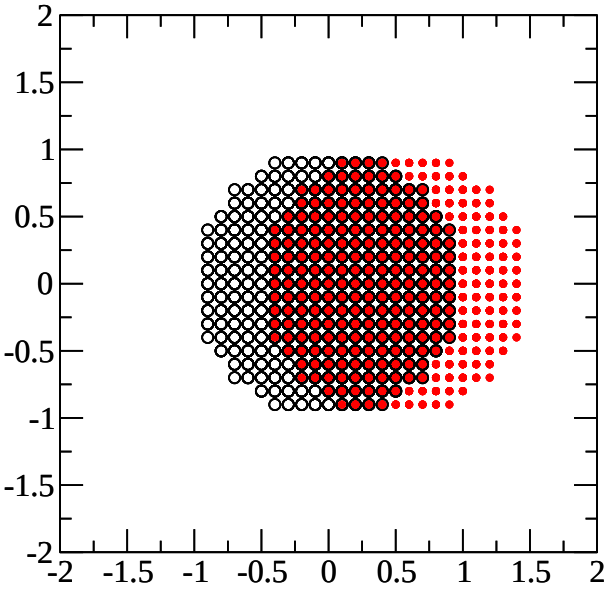


Abbildung 3.2: Anfangszustand für die Simulation der freien Elektronenschwingung.

Anfangszustand. Der Schwerpunkt der Elektronen innerhalb des Clusters liegt im Zentrum des linsenförmigen Bereichs bei $X_0 = R_c/4$. Die Anfangsgeschwindigkeit ist Null.

Die Lösung der Gleichung (3.6) für die X-Komponente zu diesen Anfangsbedingungen lautet

$$X(t) = X_0 \cos \omega_m t. \tag{3.9}$$

Abbildung 3.3 stellt das Simulationsergebnis dar. Um zu überprüfen, ob die Frequenz der Schwingung mit der Mie-Frequenz übereinstimmt, wurde eine Funktion der Form

$$X(t) = x_0 \mathrm{e}^{-\gamma t} \cos \omega t \tag{3.10}$$

mit Parametern x_0, γ und ω an die simulierte Kurve angepaßt. Es ergeben sich die Werte

$$x_0 = 0.27\, R_c, \quad \gamma = 0.04\omega_p \quad \text{und} \quad \omega = 0.567\omega_p. \tag{3.11}$$

Die Frequenz ω_p liegt nahe am erwarteten Wert $\omega_p/\sqrt{3} = 0.577\omega_p$. Außerdem findet man eine kleine Dämpfungskonstante γ, die auf die Diffusion der Elektronengeschwindigkeit zurückgeführt werden kann: in Abbildung 3.4 sieht man, daß sich die kinetische Energie der Elektronen auf einen endlichen Wert einpendelt. Es liegt also keine große Reibung vor. Durch Stöße der Simulationselektronen untereinander und an den Ionen wird die Energie der kollektiven Schwingung in Wärmeenergie umgewandelt. Die Einbeziehung von ionisierenden Stößen resultiert in einer größeren Dämpfung [28]. Das vorliegende Ergebnis geringer Dämpfung ähnelt dem aus Thomas-Vlasov-Fermi-Simulationen kleiner Metallcluster [39].

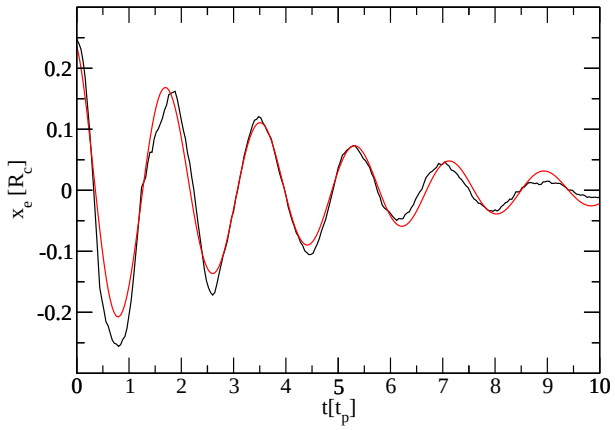


Abbildung 3.3: Freie Elektronenschwingung: Simulation (schwarz) und angepaßte Funktion der Form (3.10) (rot).

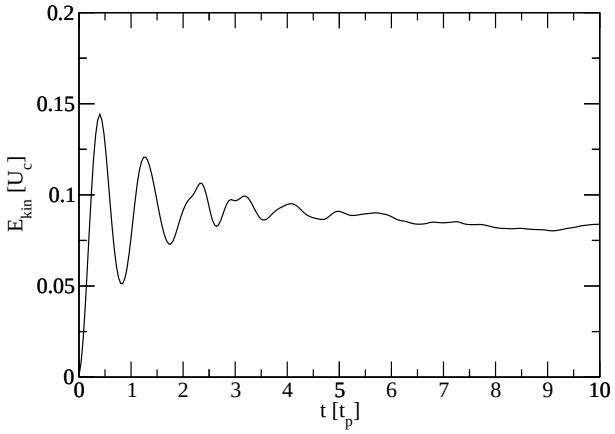


Abbildung 3.4: Kinetische Energie der Elektronen bei der freien Dipolschwingung.

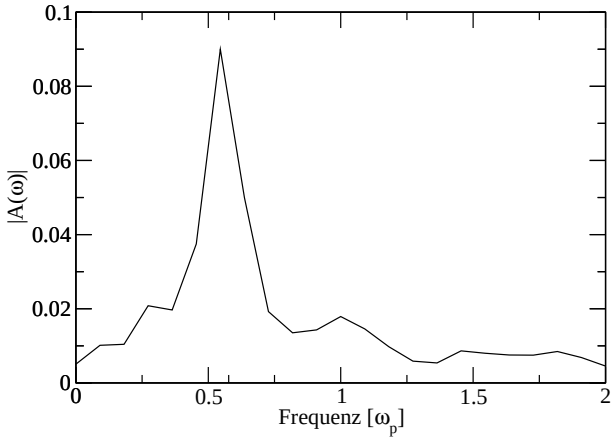


Abbildung 3.5: Frequenzspektrum der freien Elektronenschwingung. Das Maximum liegt bei $0.55\omega_p$.

Alternativ kann man die Schwingungsfrequenz durch Fouriertransformation der simulierten Kurve in Abbildung 3.3 bestimmen. Das Spektrum ist in Abbildung 3.5 dargestellt und zeigt ein deutliches Maximum bei $0.55\omega_p$, also ebenfalls nahe bei der Mie-Frequenz.

Abschließend kann festgestellt werden, daß die Simulation die kollektive Elektronenschwingung reproduziert. Die Frage ihrer resonanten Anregung wird nach der Untersuchung der Ionenbewegung diskutiert.

3.2 Ionenexpansion

Wenn ein Teil der Elektronen das Clusterplasma verlassen hat, wird die elektrostatische Abstoßung der Ionen nicht mehr kompensiert und treibt sie auseinander. Der einfachste Fall liegt vor, wenn sich im Cluster keine Elektronen mehr befinden. Dann bleibt die homogene Ionenkugel mit dem Radius R_c und der Ladung $Q_c = ZeN_a$ übrig und explodiert unter ihrer elektrostatischen Spannung. Diesen Vorgang bezeichnet man als Coulomb-Explosion. Er kann analytisch beschrieben werden, wenn man annimmt, daß die Dichte der N_i Ionen räumlich homogen bleibt. Der Radius der Kugel sei $R(t)$ mit $R(0) = R_c$. Dann gilt für die Ionendichte innerhalb der Kugel

$$n_i(t) = \frac{3N_i}{4\pi R^3(t)}, \tag{3.12}$$

mit der Zeitableitung

$$\dot{n}_i(t) = -\frac{9N_i}{4\pi R^4(t)}\dot{R}(t) = -3n_i(t)\frac{\dot{R}(t)}{R(t)}. \tag{3.13}$$

Mithilfe der Kontinuitätsgleichung für den Strom $\boldsymbol{j}_i = n_i(t)v(r,t)\,\boldsymbol{e}_r$,

$$\dot{n}_i(t) + \frac{1}{r^2}\partial_r\left(r^2 n_i(t)v(r,t)\right) = 0 \tag{3.14}$$

kann das Geschwindigkeitsfeld $v(r,t)$ nach Einsetzen von (3.13) durch einfache Integration berechnet werden. Es lautet

$$v(r,t) = \frac{\dot{R}(t)}{R(t)}r, \tag{3.15}$$

ist also proportional zum Abstand vom Ursprung. Damit erhält man für Ionen der Masse M_i die kinetische Gesamtenergie

$$\begin{aligned} K_i(t) &= 4\pi\int_0^{R(t)} dr\, r^2\,\frac{M_i}{2}n_i(t)v^2(r,t) \\ &= 4\pi\left(\frac{\dot{R}}{R}\right)^2 M_i\, n_i(t)\frac{R^5}{10} = \frac{3}{10}M\dot{R}^2(t) \end{aligned} \tag{3.16}$$

mit der Gesamtmasse $M = M_i N_i$ der Kugel. Die potentielle Energie ist die elektrostatische Spannungsenergie der homogenen Kugel und damit

$$U_i(t) = \frac{3}{5}\frac{Q_c^2}{R(t)}. \tag{3.17}$$

Die Summe der Energien (3.16) und (3.17) ist erhalten und stimmt mit ihrem Anfangswert, wenn die kinetische Energie verschwindet, überein. Es gilt also

$$\frac{3}{5}\left(\frac{1}{2}M\dot{R}^2 + \frac{Q_c^2}{R}\right) = \frac{3}{5}\frac{Q_c^2}{R_c}. \tag{3.18}$$

Das ergibt die Phasenraumbahn der Kante der Ionenkugel:

$$\dot{R} = V_{cb}\sqrt{1 - \frac{R_c}{R}}. \tag{3.19}$$

Die charakteristische Expansionsgeschwindigkeit V_{cb} wurde dabei definiert als

$$V_{cb} = \sqrt{\frac{2Q_c^2}{MR_c}}. \tag{3.20}$$

Abbildung 3.6 zeigt die Verteilung der Ionen im Phasenraum für verschiedene Zeitpunkte zusammen mit der Trajektorie der Kante. Man erkennt das lineare Geschwindigkeitsprofil. Die Coulomb-Explosion stellt den extremen Fall der Ionenexpansion dar. Höhere Ionengeschwindigkeiten als V_{cb} können im Plasmamodell des Clusters nicht erreicht werden. Physikalisch entspricht diese Geschwindigkeit der maximalen kinetischen Energie

$$E_{ion}^{max} = Ze\frac{ZeN_a}{R_c}, \tag{3.21}$$

also dem elektrostatischen Potential eines Ions am Rand der Kugel.

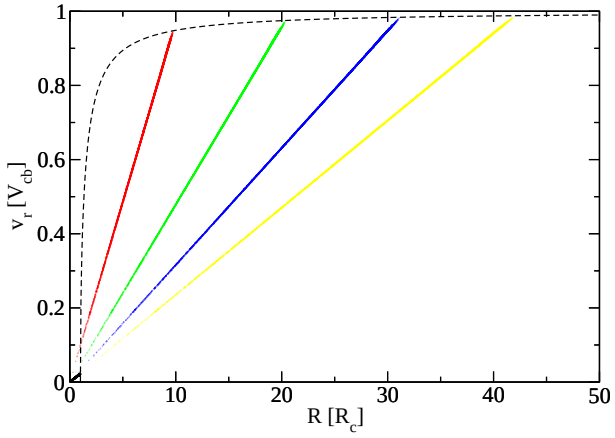


Abbildung 3.6: Phasenraumportrait der Ionenverteilung bei der Coulomb-Explosion. Die gestrichelte Kurve ist die Bahn der Kante.

3.2.1 Energiespektrum der Coulomb-Explosion

Um die Energieverteilung der Ionen nach einer Coulomb-Explosion abzuleiten, wird aus der homogenen Anfangsverteilung ein einzelnes Ion der Masse M_i und Ladung Q_i herausgegriffen. Befindet es sich am Radius r, so wird es vom elektrischen Feld derjenigen Ionen, die sich innerhalb dieses Radius befinden, angetrieben. Seine Bewegungsgleichung lautet also

$$M_i \ddot{r} = Q_i \frac{Q(r)}{r^2} \,, \tag{3.22}$$

wobei die Ladung $Q(r)$ gegeben ist durch

$$Q(r) = 4\pi Q_i \int_0^r dr'\, r'^2\, n_i(r'). \tag{3.23}$$

Es wird angenommen, daß die einzelnen Ionen einander nicht überholen. Das bedeutet, daß die Ladung $Q(r)$ nur vom Startpunkt r_0 des Ions abhängt: $Q(r) = Q(r_0)$. Diese Annahme ermöglicht die Transformation des Anfangsortes r_0 in die für $t \to \infty$ erreichte kinetische Energie $K(r_0)$. Die Transformationsgleichung bekommt man aus dem Energiesatz zu Gleichung (3.22):

$$K(r, r_0) = \frac{M_i}{2}\dot{r}^2 + Q_i \frac{Q(r_0)}{r} = Q_i \frac{Q(r_0)}{r_0}. \tag{3.24}$$

Für $t \to \infty$ divergiert $r(t)$, und man erhält die asymptotische kinetische Energie

$$K(r_0) = Q_i \frac{Q(r_0)}{r_0}. \tag{3.25}$$

Das Spektrum $f(K)$ ist dann gegeben durch

$$f(K) = 4\pi \int_0^\infty dr_0\, r_0^2\, n_i(r_0)\, \delta\left(Q_i \frac{Q(r_0)}{r_0} - K\right). \tag{3.26}$$

Wenn die Funktion $Q_i Q(r_0)/r_0$ invertierbar ist, ihre Ableitung nach r_0 also nicht verschwindet, kann das Integral ausgerechnet werden und ergibt

$$f(K) = \sum_{Q_i \frac{Q(r_0)}{r_0} = K} \frac{4\pi r_0^2\, n_i(r_0)}{|\partial_{r_0}(Q_i Q(r_0)/r_0)|}. \tag{3.27}$$

Für eine homogene Anfangsdichte mit N_i Ionen im Clusterradius R_c, $n_i = 3N_i/(4\pi R_c^3)$, gilt

$$Q(r_0) = Q_c \frac{r_0^3}{R_c^3}. \tag{3.28}$$

Dabei ist $Q_c = Q_i N_i = ZeN_a$ wieder die Gesamtladung der Ionen im Cluster. Ausgedrückt durch die maximale Ionenenergie (3.21) lautet die kinetische Energie als Funktion des Radius

$$K(r_0) = Q_i \frac{Q_c}{R_c} \frac{r_0^2}{R_c^2} = E_{ion}^{max} \frac{r_0^2}{R_c^2}. \tag{3.29}$$

Also findet man die Transformation und ihre Determinante:

$$r = R_c \sqrt{\frac{K}{E_{ion}^{max}}} \quad \text{und} \quad \partial_{r_0} K(r_0) = 2E_{ion}^{max} \frac{r_0}{R_c^2} \tag{3.30}$$

Mit diesen Größen lautet das Spektrum

$$f(K) = \frac{3}{2E_{ion}^{max}} \sqrt{\frac{K}{E_{ion}^{max}}}, \tag{3.31}$$

wobei ein Fakor N_i weggelassen wurde, um es auf eins zu normieren. Das normierte Spektrum und das Ergebnis einer Simulation mit 10000 Ionen zeigt Abbildung 3.7. Charakteristisch sind das Verhalten $\sim \sqrt{K}$ und die Kante bei der maximalen Ionenenergie E_{ion}^{max}. Beides wird von der Simulation reproduziert. Am Ende des Spektrums bilden die Simulationsteilchen einen Gipfel, dessen Untersuchung Gegenstand des nächsten Abschnitts ist.

3.2.2 Inhomogene Ionendichten

Der Gipfel am Ende des Spektrums der Coulomb-Explosion, Abbildung 3.7, hängt mit dem Verschwinden der Determinante (3.27) zusammen. Abbildung 3.8 zeigt die Determinante

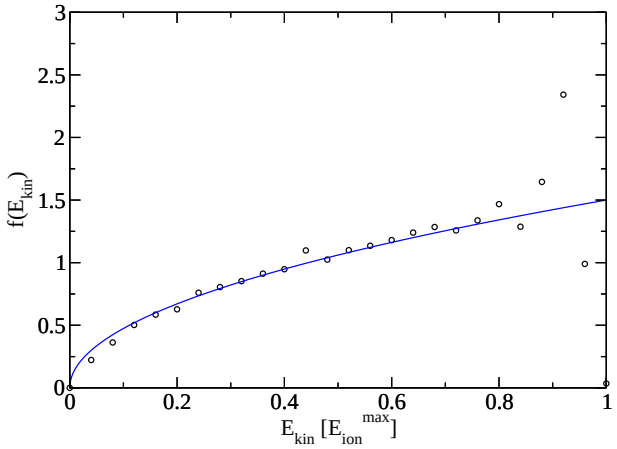


Abbildung 3.7: Energiespektrum der Coulomb-Explosion: Simulation (Punkte) und die Funktion (3.31).

zusammen mit der Funktion $K(r_0)$. Diese Funktion wächst bis zum Rand der Ionenkugel und nimmt dann mit $1/r_0$ ab. Im Folgenden wird die Dichte immer auf die Ionendichte $n_0 = 3N_i/(4\pi R_c^3)$, die kinetische Energie auf E_{ion}^{max} und die Determinante auf E_{ion}^{max}/R_c normiert. Die Zahl der Simulationsionen ist N_i.

Das Auftreten des Gipfels legt die Vermutung nahe, daß die Energieverteilung an den Stellen, an denen die Determinante klein wird, vom erwarteten wurzelförmigen Verhalten abweicht. Um dies zu überprüfen, wurde die Anfangsdichte der Simulation bei einer festen Anzahl von $N_i = 10000$ Simulationsionen variiert: Ein Anteil $n_1 = N_1/N_i$ wurde in einer kleineren Kugel mit Radius $R_c/2$ verteilt, der eine zweite Kugel mit Radius R_c, die den Bruchteil $n_2 = N_2/N_i$ Ionen enthält, überlagert wurde. Man erhält dann eine stückweise konstante Ionendichte $n_i(r)$ mit einem Sprung beim Radius $R_c/2$:

$$n_i(r) = n_0 \begin{cases} 8n_1 + n_2 & r < R_c/2 \\ n_2 & R_c/2 \le r < R_c \\ 0 & r \ge R_c \end{cases} . \tag{3.32}$$

Damit lautet die Ladung in einer Kugel mit Radius r

$$Q(r) = Q_c \begin{cases} (8n_1 + n2)\frac{r^3}{R_c^3} & r < R_c/2 \\ n_1 + n_2\frac{r^3}{R_c^3} & R_c/2 \le r < R_c \\ 1 & r \ge R_c \end{cases} \tag{3.33}$$

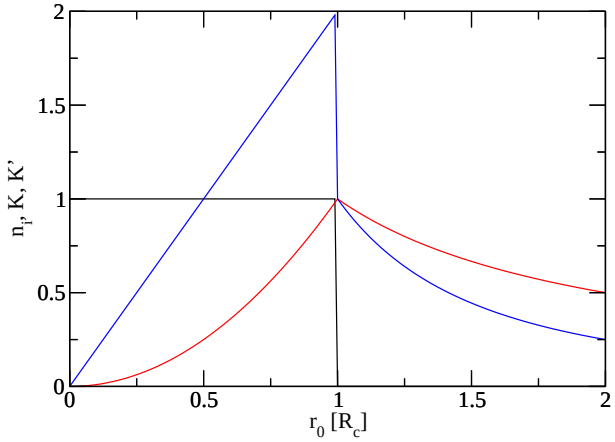


Abbildung 3.8: Dichte (schwarz), kinetische Energie (rot) und Determinante (blau) für die homogene Vollkugel. $K(r_0)$ ist am Rand der Kugel nicht invertierbar.

und die kinetische Energie nach Gleichung (3.25)

$$K(r) = E_{ion}^{max} \begin{cases} (8n_1 + n_2)\frac{r^2}{R_c^2} & r < R_c/2 \\ n_1 \frac{R_c}{r} + n_2 \frac{r^2}{R_c^2} & R_c/2 \leq r < R_c \\ \frac{R_c}{r} & r \geq R_c \end{cases} . \tag{3.34}$$

Die Determinante ist gegeben durch den Betrag der Ableitung dieser Funktion:

$$K'(r) = \frac{E_{ion}^{max}}{R_c} \begin{cases} 2(8n_1 + n_2)\frac{r}{R_c} & r < R_c/2 \\ |-n_1 \frac{R_c^2}{r^2} + 2n_2 \frac{r}{R_c}| & R_c/2 \leq r < R_c \\ \frac{R_c^2}{r^2} & r \geq R_c \end{cases} \tag{3.35}$$

Im ersten Fall wurde $n_1 = 1/5$ und $n_2 = 4/5$ gewählt. Dichte, kinetische Energie und Determinante sind in Abbildung 3.9 links dargestellt, das resultierende Spektrum rechts daneben. Die kinetische Energie verläuft ähnlich wie im Fall der homogenen Dichte, aber die Determinante hat bei $R_c/2$ eine Nullstelle. Dieser Anfangsradius wird gemäß (3.34) in die Energie $E_{ion}^{max} \cdot 3/5$ transformiert. Das Spektrum besitzt an dieser Stelle einen Gipfel; nach Gleichung (3.27) ist dies zu erwarten, weil bei endlicher Dichte der Nenner verschwindet. Bis auf den Bereich zwischen den beiden Spitzen gleicht das Spektrum demjenigen im Fall homogener Dichte.

Im zweiten Fall wurde $n_1 = 1/10$ und $n_2 = 9/10$ gesetzt. Die Determinante hat dann keine Nullstelle, siehe Abbildung 3.10 links. Der Dichtestufe entspricht die Energie $E_{ion}^{max} \cdot 17/40 = E_{ion}^{max} \cdot 0.425$. Das Spektrum hat dort nur eine kleine Stufe, die in eine zweite Wurzelfunktion übergeht, und ist bis auf den Gipfel am Ende erwartungsgemäß regulär.

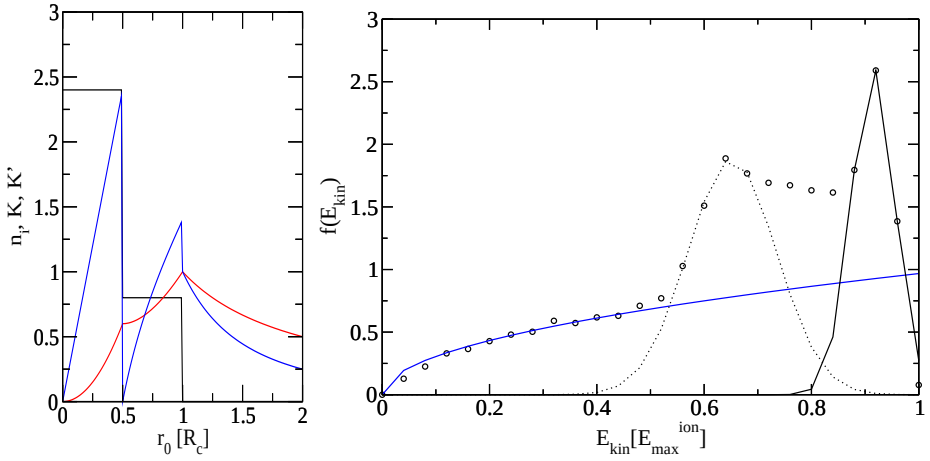


Abbildung 3.9: Dichte (schwarz), kinetische Energie (rot) und Determinante (blau) für den Fall $n_1 = 1/5$, $n_2 = 4/5$ (links). Die Dichtestufe hinterläßt einen Gipfel im Spektrum (rechts, Simulation: Punkte, Wurzel: blau). Die schwarzen Linien dienen der Veranschaulichung.

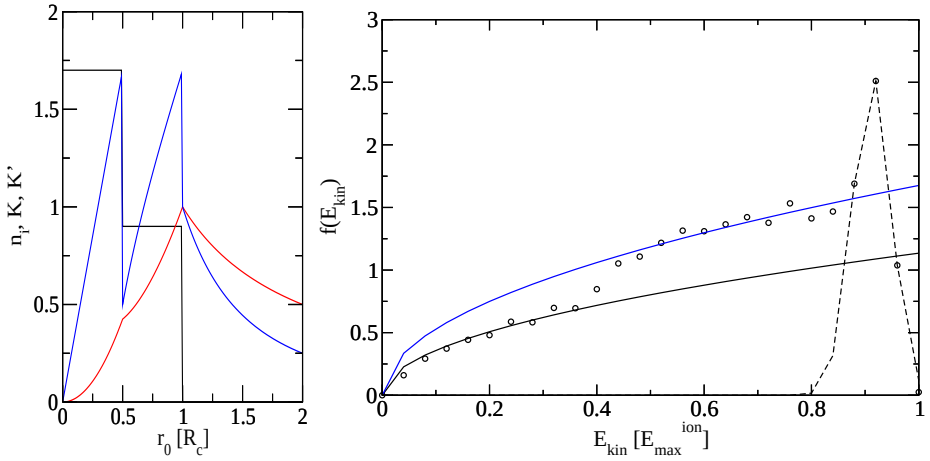


Abbildung 3.10: Dichte (schwarz), kinetische Energie (rot) und Determinante (blau) für $n_1 = 1/10$, $n_2 = 9/10$ (links). Da die Determinante nicht verschwindet, ist das Spektrum (rechts, Punkte: Simulation) bis auf den Gipfel am Ende regulär. Linien dienen der Verschanschaulichung.

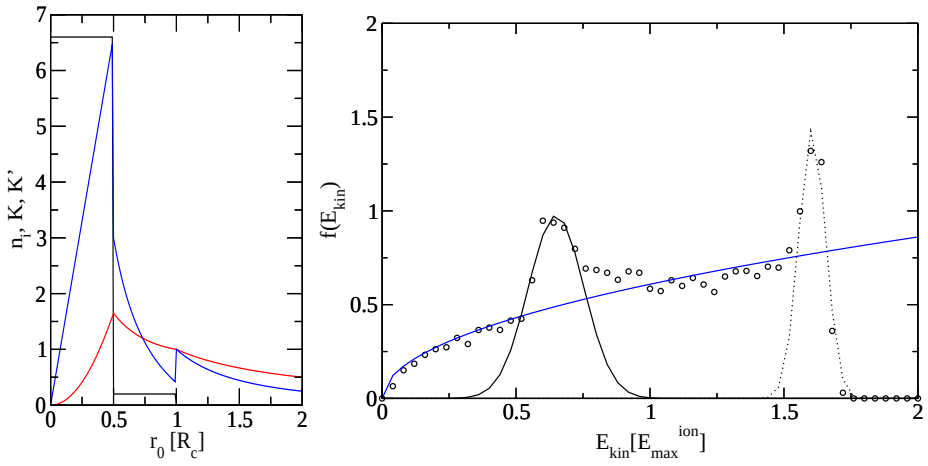


Abbildung 3.11: Dichte (schwarz), kinetische Energie (rot) und Determinante (blau) im Extremfall $n_1 = 4/5$ und $n_2 = 1/5$ (rechts). Da die Energie der Stufe bei $R_c/2$ über der am Kugelrand liegt, überholen die inneren Ionen die umgebende Schale.

Im Extremfall $n_1 = 4/5$ und $n_2 = 1/5$ liegt die der Dichtestufe entsprechende Energie mit $1.65E_{ion}^{max}$ über der in der Explosion einer homogenen Dichte erreichbaren Maximalenergie. Die kinetische Energie, siehe Abbildung 3.11 links, ähnelt derjenigen der homogenen Dichte; allerdings erscheint sie räumlich um die Hälfte zusammengedrückt. Auch das Spektrum gleicht demjenigen der homogenen Dichte, es bricht lediglich bei der Maximalenergie $1.65E_{ion}^{max}$, die dem Radius $R_c/2$ entspricht, ab. Die Position des unteren Gipfels erwartet man bei $1E_{ion}^{max}$, sie liegt aber bei $0.61E_{ion}^{max} = 1/1.65E_{ion}^{max}$. Offenbar haben die Energien, die den Dichtestufen entsprechen, die Rollen getauscht. Dies hat die anschauliche Bedeutung, daß die in der inneren Kugel gestarteten Ionen mit $r_0 < R_c/2$ diejenigen in der äußeren Schale $R_c/2 \leq r < R_c$ überholt haben.

Gipfel im Spektrum entsprechen also Stellen in der Anfangsdichte, an denen die Ableitung der kinetischen Energie (3.25) verschwindet oder das Vorzeichen wechselt. Das ist am Rand der Ionenkugel immer der Fall. Physikalisch kann dies als Auftreten von Überholprozessen interpretiert werden: Die Kante der Kugel kann mit endlich vielen Simulationsteilchen nicht scharf dargestellt werden. Wie bei den aufgeführten Beispielen inhomogener Dichten umgibt eine Schale geringer Ionendichte die homogene Verteilung, die von den Ionen im Inneren teilweise überholt wird. Das erzeugt am Ende des Spektrums einen Gipfel.

3.3 Expansion des Clusterplasmas

Soweit wurde die Dynamik der Elektronen und Ionen getrennt behandelt. In diesem Abschnitt wird die zeitliche Entwicklung des Plasmas aus einem thermischen Anfangszustand ohne externes Laserfeld beschrieben. Das Plasma expandiert dann isotrop. In der Arbeit [40] wird der Cluster im Laserfeld im Rahmen eines radialsymmetrischen Modells behandelt; dort wird die Ionenexpansion hydrodynamisch beschrieben. Auch das Nanoplasma-Modell von T. Ditmire *et. al.* [22] geht von einer radialsymmetrischen Expansion aus.

Die inverse spezifische Masse der Simulationsionen $M_i/Q_i = 2.41 \cdot 10^4 m_e/e$ entspricht der von zehnfach geladenen Xenonionen. Elektronen und Ionen werden in überlappenden homogenen Kugeln mit Radius R_c verteilt, sodaß der Anfangszustand elektrisch neutral ist. Die Ionengeschwindigkeiten werden auf Null gesetzt, die der Elektronen werden gemäß einer Gauß-Verteilung mithilfe des Neumann-Verfahrens ausgewürfelt. Die anfängliche Geschwindigkeitsverteilung der Elektronen lautet also

$$f_e(\boldsymbol{v}) \sim \mathrm{e}^{-\frac{M_e v^2}{2T_0}}, \tag{3.36}$$

mit der Masse $M_e = m_e N_e/J$ eines Simulationselektrons und der Temperatur T_0. Die Geschwindigkeit wird mit der Plasmageschwindigkeit $\omega_p R_c$ skaliert. Analog zur Ionenenergie E_{ion}^{max} kann man die Elektronen-Einteilchenenergie

$$E_{ele}^{max} = |Q_e| \frac{Q_c}{R_c} \tag{3.37}$$

am Clusterrand definieren. Damit gilt, siehe auch Gleichung (A.8),

$$f_e(\boldsymbol{v}) \sim \mathrm{e}^{-\frac{3E_{ele}^{max}}{2T_0} \frac{v^2}{\omega_p^2 R_c^2}}. \tag{3.38}$$

Im Folgenden wird die Anfangstemperatur T_0 variiert. Abbildung 3.12 zeigt die Anfangsverteilung der Radialkomponente der Elektronengeschwindigkeiten für $T_0 = 3/8 E_{ele}^{max}$. Da sich die Elektronen- und die Ionenverteilung im Anfangszustand neutralisieren, verschwindet dann das Potential. Aufgrund ihrer endlichen Anfangsgeschwindigkeit verläßt ein Teil der Elektronen den Cluster in radialer Richtung. Es stellt sich ein elektrostatisches Potential ein, das den Rest der Elektronen einfängt. Aufgrund ihrer nicht mehr kompensierten Abstoßung beginnen die Ionen zu expandieren.

Anhand des Vorzeichens ihrer Gesamtenergie $E_{kin} + E_{pot}$ können freie von gebundenen Elektronen unterschieden werden. Wie man in Abbildung 3.13 erkennt, bleibt die Zahl N_{bnd} der gebundenen Elektronen während der Expansion konstant, während die Anzahl N_{in} der

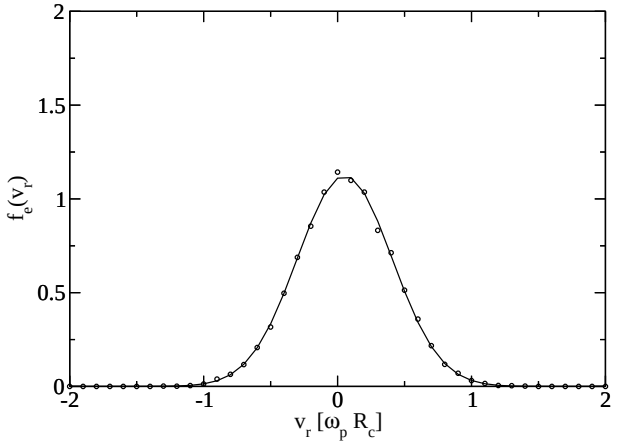


Abbildung 3.12: Gewünschte (Linie) und mit dem Neumann-Verfahren erhaltene (Punkte) Anfangsverteilung der Elekronengeschwindigkeiten.

Elektronen im Cluster zunimmt. Das liegt daran, daß gebundene Elektronen in der Nähe des Clusters bei der Expansion eingefangen werden. Freie Elektronen mit positiver Energie befinden sich so weit vom Cluster entfernt, daß sie nicht mehr mit ihm wechselwirken.

3.3.1 Elektronenexpansion

Die Aufteilung der Elektronen in freie und gebundene findet man in ihrer radialen Geschwindigkeitsverteilung wieder. Abbildung 3.14 zeigt diese Verteilung für die Anfangstemperatur $T_0 = 3/8E_{ele}^{max}$. Sie kann gut durch zwei Gauß-Funktionen dargestellt werden:

$$f_{bnd}(v_r) = N_{bnd}\mathrm{e}^{-\frac{3E_{ele}^{max}}{2T_{bnd}}\frac{v_r^2}{\omega_p^2 R_c^2}} \tag{3.39}$$

$$f_f = N_f\mathrm{e}^{-\frac{3E_{ele}^{max}}{2T_f}\frac{(v_r-v_f)^2}{\omega_p^2 R_c^2}} \quad . \tag{3.40}$$

Die erste Funktion beschreibt die gebundene Komponente mit der Temperatur T_{bnd}, die zweite die freie mit der Temperatur T_f und der Expansionsgeschwindigkeit v_f der freien Elektronenwolke. N_{bnd} und N_f sind Normierungsfaktoren. Durch Anpassen von Funktionen der Form (3.39) und (3.40) an die Simulationsdaten können die Parameter T_f und v_f der freien Elektronen bestimmt werden. Abbildung 3.15 zeigt die Temperatur T_f als Funktion der Anfangstemperatur T_0. Offenbar gilt näherungsweise

$$T_f = \frac{1}{2}T_0. \tag{3.41}$$

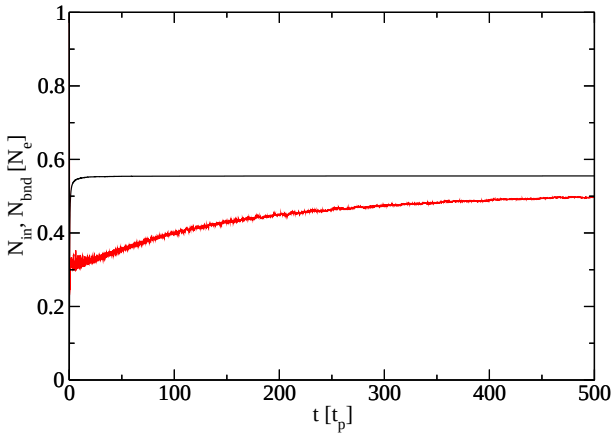


Abbildung 3.13: Anteil gebundener (schwarz) und im Cluster befindlicher (rot) Elektronen. Die Zahl der gebundenen Elektronen bleibt konstant.

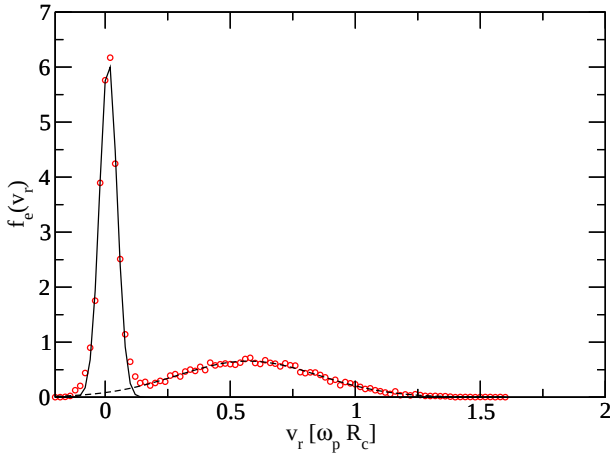


Abbildung 3.14: Simulierte Geschwindigkeitsverteilung (Punkte) und angepaßte Kurven der Form (3.39) und (3.40) für $T_0 = 3E_{ele}^{max}/8$.

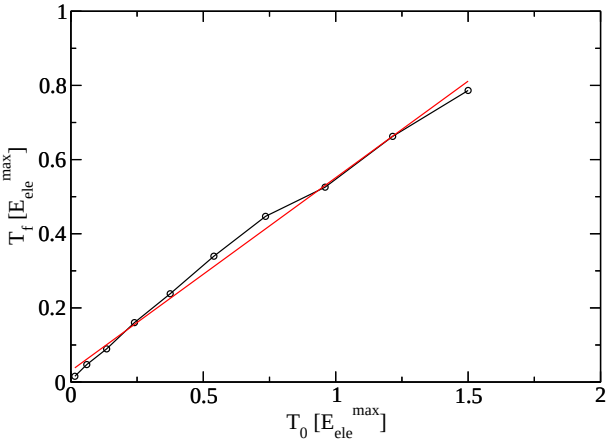


Abbildung 3.15: Temperatur T_f der freien Elektronen und eine Regressionsgerade mit der Steigung 0.502.

Der Expansionsgeschwindigkeit v_f der freien Elektronen kann die kinetische Energie

$$E_f = \frac{M_e}{2} v_f^2 = 3 \left(\frac{v_f}{\omega_p R_c} \right)^2 E_{ele}^{max} \tag{3.42}$$

eines Simulationselektrons der Masse M_e zugeordnet werden. Wie in Abbildung 3.16 zu sehen, verhält sich auch diese Größe näherungsweise proportional zur Anfangstemperatur T_0. Es gilt in grober Näherung

$$E_f = T_0. \tag{3.43}$$

Damit hat man die Beziehung

$$\frac{3}{2} T_0 = E_f + \frac{1}{2} T_0 \ , \tag{3.44}$$

die die Aufteilung der thermischen Anfangsenergie der Elektronen in gerichtete Expansionenergie und thermische Energie der Elektronenwolke beschreibt. Diese besitzt nur noch einen Freiheitsgrad, weil sie in radialer Richtung ohne Rotation expandiert.

3.3.2 Ionenexpansion

Die Expansion der Ionen wird im Hinblick auf den Energietransfer von den gebundenen Elektronen diskutiert. Wenn die Anfangstemperatur der Elektronen so klein ist, daß ein wesentlicher Teil im Cluster verbleibt, wird die Abstoßung der Ionen fast kompensiert; im Falle großer Anfangstemperatur verlassen die meisten Elektronen den Cluster, und man erwartet die Energieverteilung der Coulomb-Explosion für die Ionen.

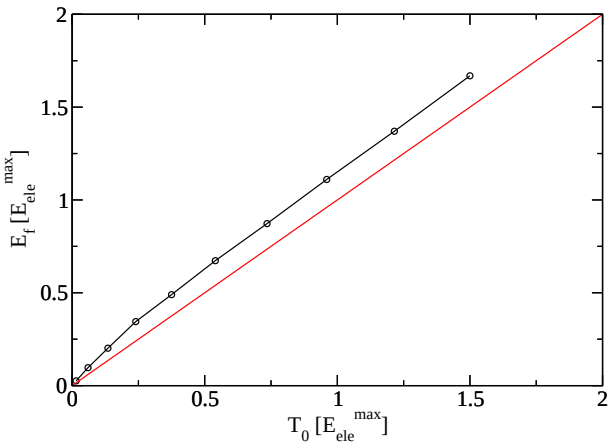


Abbildung 3.16: Expansionsenergie (3.42) der freien Elektronen und Gerade $E_f = T_0$.

Abbildung 3.17 zeigt den zeitlichen Verlauf der kinetischen Energien von Elektronen und Ionen und die potentielle Energie des Gesamtsystems für die Anfangstemperatur $T_0 = 0.06 E_{ele}^{max}$, bei der 80% der Elektronen gebunden bleiben. Ein Großteil der kinetischen Energie der Ionen wird den Elektronen entzogen.

Die Energieverteilung der Ionen, Abbildung 3.18, zeigt in diesem Fall deutlich eine Komponente langsamer Ionen. Ihr ist eine Wurzelfunktion überlagert, die von der Coulomb-Explosion bekannt ist; der Gipfel am Ende der Verteilung wurde dort ebenfalls diskutiert. Das Spektrum hat die Form

$$f_i(E) = N_s \sqrt{\frac{E}{T_s}} \mathrm{e}^{-\frac{E}{T_s}} + N_{cb} \sqrt{\frac{E}{E_{cb}}} \tag{3.45}$$

einer thermische Verteilung der Temperatur T_s und eine Wurzelfunktion mit der Maximalenergie E_{cb}. Die Maximalenergie E_{cb}, bei der das Spektrum abbricht, kann wiederum durch Anpassen einer Funktion dieser Form gefunden werden.

Im Falle hoher Anfangstemperatur verlassen die meisten Elektronen den Cluster. Die kinetische Gesamtenergie der Ionen wird fast vollständig dem Potential entzogen, siehe Abbildung 3.19. Die kinetische Energie der Elektronen ist konstant. Das Ionenspektrum, Abbildung 3.20, gleicht demjenigen der Coulomb-Explosion. Die thermische Verteilung in (3.45) ist nur am steileren Anstieg des Spektrums bei kleinen Energien zu erkennen.

Die Maximalenergie der Wurzel-Komponente des Ionenspektrums kann abgeschätzt werden: Wenn die schnellen Elektronen sich aus dem Cluster entfernt haben, trägt er die Nettoladung

$$\left(1 - \frac{N_{in}}{N_e}\right) Q_c \equiv \alpha Q_c. \tag{3.46}$$

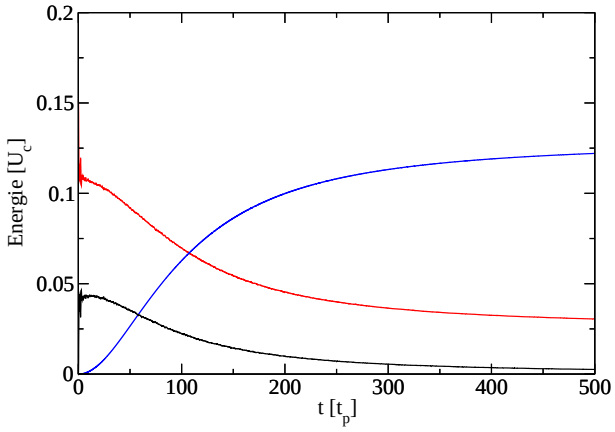


Abbildung 3.17: Kinetische Energie der Elektronen (rot) und Ionen (blau) und potentielle Energie (schwarz) für $T_0 = 0.06 E_{ele}^{max}$.

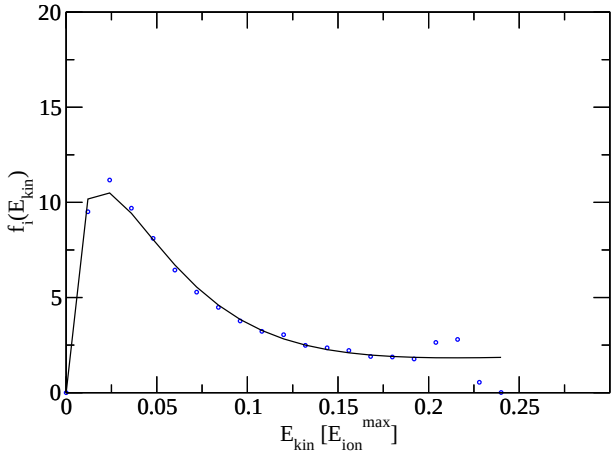


Abbildung 3.18: Energieverteilung der Ionen (Punkte) und Funktion der Form (3.45) für $T_0 = 0.06 E_{ele}^{max}$.

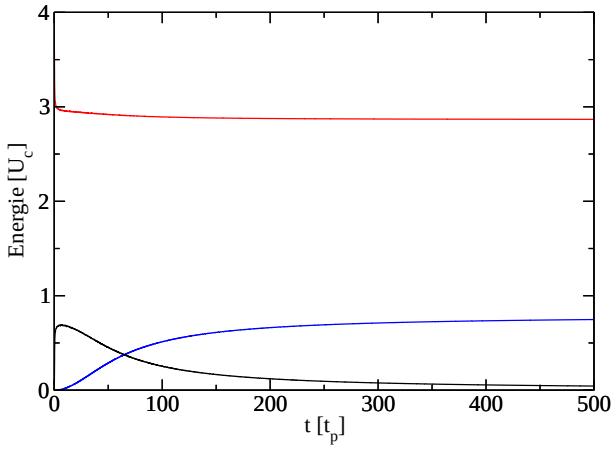


Abbildung 3.19: Kinetische Energie der Elektronen (rot) und Ionen (blau) und potentielle Energie für $T_0 = 1.5E_{ele}^{max}$.

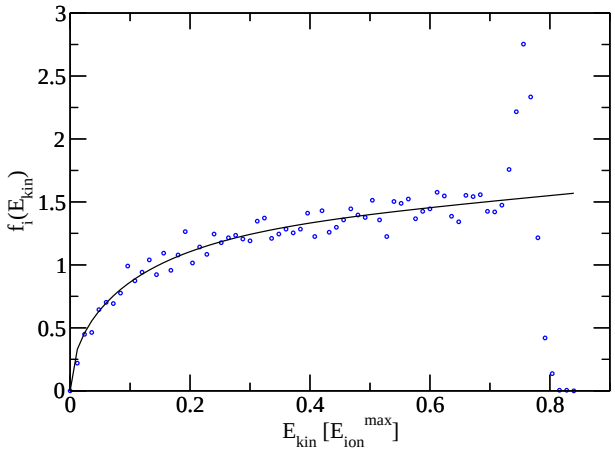


Abbildung 3.20: Energieverteilung der Ionen (Punkte) und Funktion der Form (3.45) für $T_0 = 1.5E_{ele}^{max}$.

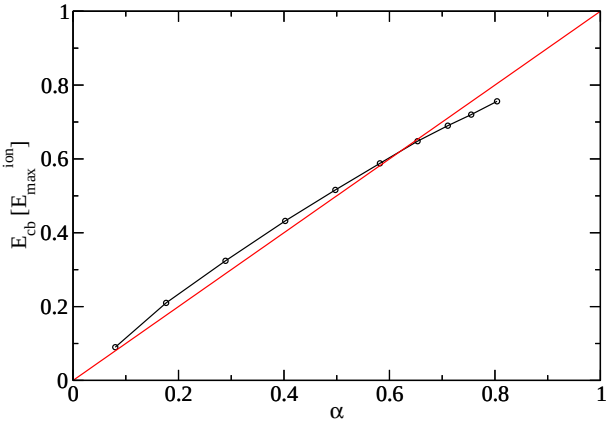


Abbildung 3.21: Die maximale Ionenenergie E_{cb} (Punkte) ist näherungsweise proportional zum äußeren Ionisationsgrad. (Rot) Gerade $E_{cb} = \alpha E_{ion}^{max}$.

Dabei ist N_{in} die Anzahl der Elektronen innerhalb des Clustervolumens. Der Faktor α wird als äußerer Ionisationsgrad bezeichnet. Die maximal erreichbare kinetische Energie E_{cb} aus (3.45) ist die potentielle Energie der Oberfächenionen. Diese ist im Vergleich zur Coulomb-Explosion um den Faktor α reduziert:

$$E_{cb} = \alpha E_{ion}^{max} \ . \tag{3.47}$$

In Abbildung 3.21 zeigt die maximale Ionenenergie als Funktion des äußeren Ionisationsgrads. Die Beziehung (3.47) ist näherungsweise erfüllt.

Die Gültigkeit der Beziehung (3.47) zeigt, daß die Expansion der Ionen auch für kleine Nettoladung des Clusters elektrostatisch angetrieben wird, anders als in der Arbeit [22]. Dort wird die Expansion durch den Elektronendruck angetrieben. In Kapitel 4.2 wird gezeigt, daß zum qualitativen Verständnis der Laserabhängigkeit der maximalen Ionenenergie nur die elektrostatische Expansion herangezogen werden muß.

3.4 Potentialabschirmung

Nachdem die schnellen Elektronen den Cluster verlassen haben, erzeugt das übrige geladene Plasma im Außenraum ein elektrostatisches Potential $\phi(r)$. Eine Abbildung des Potentialverlaufs erhält man, indem man die potentielle Energie der Simulationselektronen gegen ihren Abstand vom Ursprung aufträgt. Diese ist gegeben durch

$$U(r) = Q_e \phi(r) = -E_{ele}^{max} \left(\frac{R_c}{Q_c} \phi(r) \right) , \tag{3.48}$$

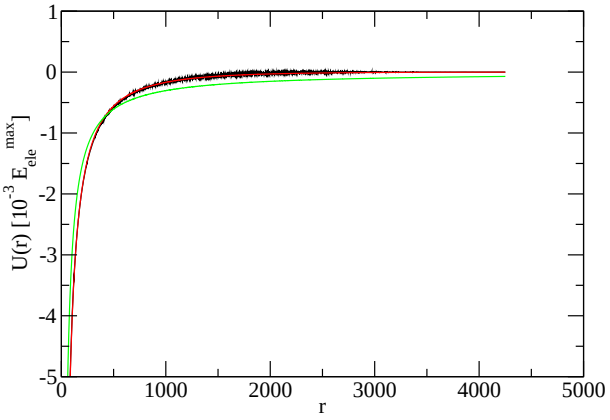


Abbildung 3.22: Potentialverlauf aus der Simulation (schwarz), Debye-Potential (rot) und Coulomb-Potential (grün).

wenn man wieder die Elektronenenergie $E_{ele}^{max} = |Q_e|Q_c/R_c$ einführt. Außerhalb des Clusters erwartet man ein Coulomb-Potential,

$$U_{cb}(r) = \frac{U_0 R_c}{r}, \tag{3.49}$$

mit der Bindungsenergie $U_0 < 0$. Da die Wolke aus freien Elektronen den Cluster umgibt, sollte außerdem eine Abschirmung auftreten, die diese Funktion zum Debye-Potential

$$U_d(r) = \frac{U_0 R_c}{r} \mathrm{e}^{-r/\lambda_d} \tag{3.50}$$

mit der Abschirmlänge λ_d abwandelt. Diese beiden Funktionen können an den Potentialverlauf angepaßt werden, woraus man die Parameter U_0 und λ_d erhält. Abbildung 3.22 zeigt den Potentialverlauf aus der Simulation mit angepaßten Funktionen der Form (3.49) und (3.50).

Der Potentialverlauf wird besser durch das Debye-Potential beschrieben, was das Auftreten der Abschirmung belegt.

Die Bindungsenergie U_0 sollte durch die Gesamtladung $Q_c(1 - N_{in}/N_e) = \alpha Q_c$, multipliziert mit der Elektronenladung, gegeben sein:

$$U_0 = -Q_e \, \alpha \frac{Q_c}{R_c} = -\alpha E_{ele}^{max}. \tag{3.51}$$

Sie entspricht also dem negativen äußeren Ionisationsgrad. In Abbildung 3.23 sieht man, daß diese Beziehung für die mit dem Debye-Potential ermittelte Bindungsenergie näherungsweise erfüllt ist. Der mit dem Coulomb-Potential ermittelte Wert weicht von der Vorhersage stark ab, wenn der Ionisationsgrad groß ist. Das kann man darauf zurückführen,

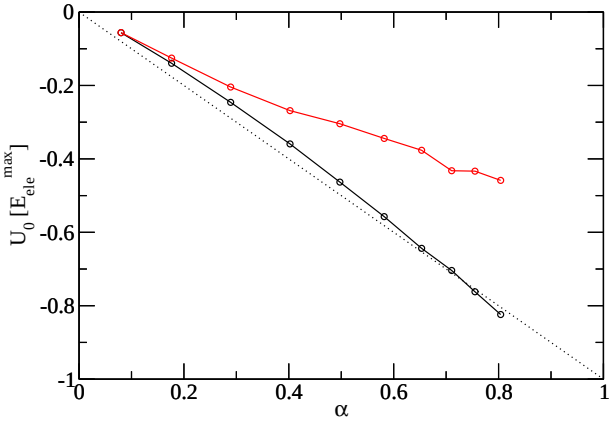


Abbildung 3.23: Mit Debye-Potential (3.50)(schwarz) und Coulomb-Potential(3.49)(rot) ermittelte Bindungsenergie und Gerade $U_0 = -\alpha E_{ele}^{max}$.

daß gerade im Fall großer Nettoladung viele Elektronen in der Nähe des Clusters bleiben, sodaß das Potential stärker abgeschirmt wird.

Die aus der Plasmaphysik bekannte Debye-Länge ist proportional zu $\sqrt{T/n}$, wobei T und n Temperatur und Dichte der abschirmenden Ladungsträger sind. Im vorliegenden Fall kann die Dichte der Simulationselektronen nicht zuverlässig ermittelt werden, weil sich die Abschirmwolke über mehrere 1000 Clusterradien erstreckt. Man sieht aber in Abbildung 3.24, daß ihr Quadrat proportional zur Temperatur T_f der freien Elektronen anwächst. Das stützt die Interpretation der freien Elektronen als expandierende Abschirmwolke.

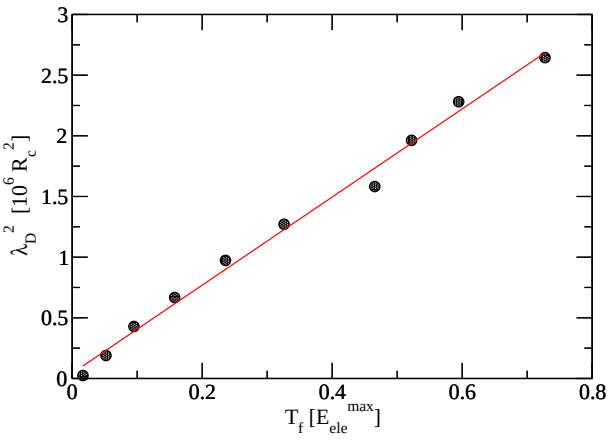


Abbildung 3.24: Das Quadrat der numerisch ermittelten Abschirmlänge λ_d (Punkte) ist proportional zur Temperatur der freien Elektronen.

3.5 Anregung der Dipolschwingung

Eine wichtige Konsequenz der Ionenexpansion ist die zeitliche Änderung der Resonanzfrequenz des Clusterplasmas. Diese ist durch Gleichung (3.7) gegeben. Wenn der Radius der Ionenkugel sich zeitlich ändert, fällt die Resonanzfrequenz mit $R(t)^{-3/2}$ ab. Dabei muß man annehmen, daß die Expansion homogen verläuft. Die zeitabhängige Mie-Frequenz lautet

$$\omega_m(t) = \sqrt{\frac{|Q_e|}{M_e}\frac{Q_c}{R(t)^3}} = \omega_m(t=0)\sqrt{\frac{R_c^3}{R^3(t)}}. \tag{3.52}$$

Um die resonante Anregung der Dipolschwingung zu untersuchen, wird ein in z-Richtung polarisiertes Laserfeld der Form

$$\boldsymbol{E}(t) = E_0 \boldsymbol{e}_z \sin(\omega_L t) \tag{3.53}$$

mit Frequenz ω_L und Amplitude E_0 angelegt. Die Bewegungsgleichung für die z-Komponente Z_e der Elektronen im Cluster lautet also

$$\ddot{Z}_e + \omega_m^2(t) Z_e = \frac{Q_e}{M_e} E_0 \sin \omega_L t. \tag{3.54}$$

Resonante Anregung tritt auf, wenn die Mie-Frequenz mit der Laserfrequenz zusammenfällt, wenn also

$$\frac{\omega_m(t)}{\omega_L} = \frac{\omega_m(0)}{\omega_p}\frac{\omega_p}{\omega_L}\left(\frac{R_c}{R(t)}\right)^{3/2} \tag{3.55}$$

gilt. Zu Anfang ist $\omega_m = \omega_p/\sqrt{3}$, siehe auch Gleichung (3.8). Bei einer Laserfrequenz von $\omega_L = 0.1\omega_p$ tritt die Resonanz auf, wenn die Ionenkugel den kritischen Radius $R(t) = 3.22R_c$ erreicht.

Abbildung 3.25 zeigt die Schwerpunktsgeschwindigkeit $V_e = \dot{Z}_e$ der Elektronen im Cluster als Funktion der Zeit. Die Laseramplitude beträgt $E_0 = 0.03E_c$.

Die Ionenmasse pro Ladung, die die Expansionsgeschwindigkeit bestimmt, beträgt hier $5000m_e/e$. Abbildung 3.26 zeigt den Radius $R(t)$ der Ionenkugel, definiert als Maximalabstand der Ionen vom Ursprung zum Zeitpunkt t. Der kritische Radius $3.22R_c$ wird in der zwölften Laserperiode überschritten.

Da sich die Ionen in den ersten Laserperioden nicht wesentlich ausdehnen, kann man annehmen, daß die Mie-Frequenz in dieser Zeit ungefähr konstant bleibt. Die Schwerpunktsgeschwindigkeit setzt sich dann aus der speziellen und einer homogenen Lösung von Gleichung (3.54) zusammen:

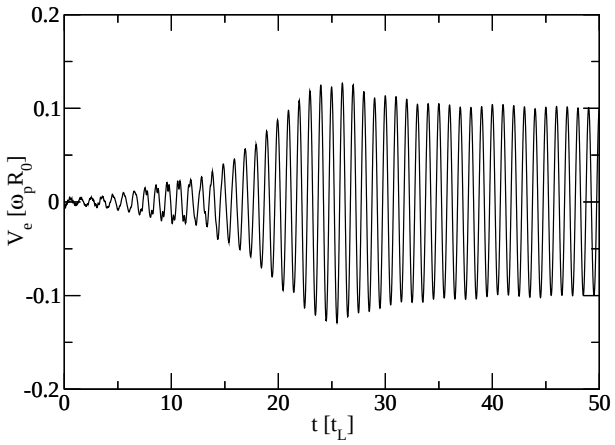


Abbildung 3.25: Schwerpunktsgeschwindigkeit im Laserfeld.

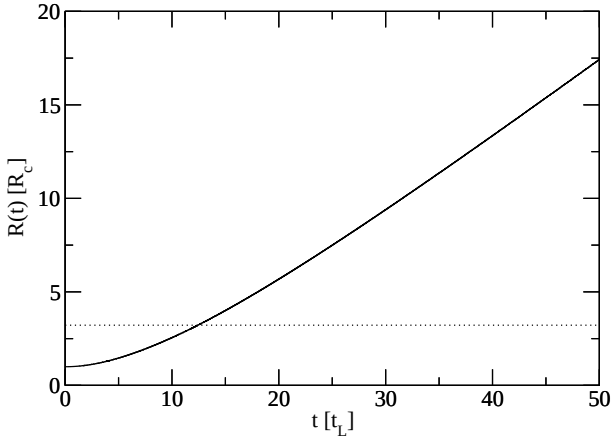


Abbildung 3.26: Radius $R(t)$ der Ionenverteilung (durchgezogen) und Gerade $R = 3.22R_c$ (Punkte).

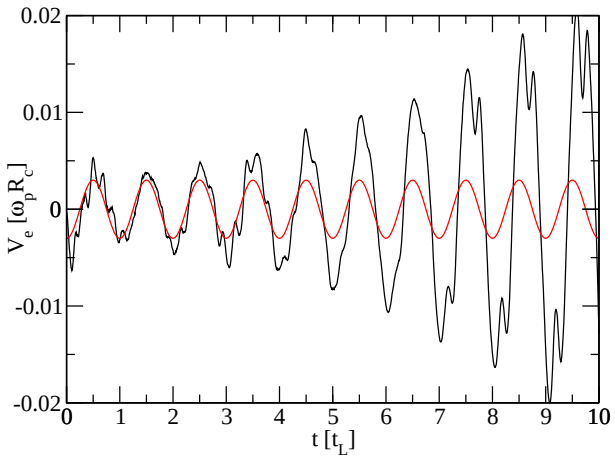


Abbildung 3.27: Die ersten zehn Laserperioden von Abbildung 3.25: Simulation (schwarz) und die Funktion (3.56).

$$\dot{Z}_e(t) = \frac{Q_e E_0 \omega_L}{M_e \omega_m^2} \cos \omega_L t \; + \; \dot{Z}_{hom}, \tag{3.56}$$

wobei im Nenner die Laserfrequenz vernachlässigt wurde, weil sie mit $\omega_L = 0.1\omega_p = \sqrt{3}/10\omega_m$ kleiner als die Mie-Frequenz ist. Die homogene Lösung oszilliert mit der Mie-Frequenz. In Abbildung 3.27 sieht man, daß diese Funktion die Geschwindigkeit beschreibt, solange die Amplitude nicht zu stark anwächst. In der ersten Laserperiode ist der erzwungenen Schwingung eine freie Mie-Oszillation überlagert. Diese ergibt sich daraus, daß der Schwerpunkt aufgrund der zufällig verteilten Elektronen im Anfangszustand nicht exakt im Ursprung liegt.

Wenn die Ionen sich über den kritischen Radius ausgedehnt haben, kann die Rückstellkraft in Gleichung (3.54) vernachlässigt werden. Die Geschwindigkeit lautet dann

$$\dot{Z}_e(t) = -\frac{Q_e E_0}{M_e \omega_L} \cos \omega_L t. \tag{3.57}$$

Diese Funktion und die simulierte Geschwindigkeit zeigt Abbildung 3.28.

Um das Durchlaufen der Resonanz genauer zu untersuchen, wird die relative Phase von Geschwindigkeit und Laserfeld berechnet. Wenn man annimmt, daß die Geschwindigkeit während der n-ten Laserperiode durch

$$v_n \sin(\omega_L t + \phi_n) \tag{3.58}$$

mit konstanter Amplitude v_n und Phase ϕ_n gegeben ist, kann die Phase aus den Skalar-

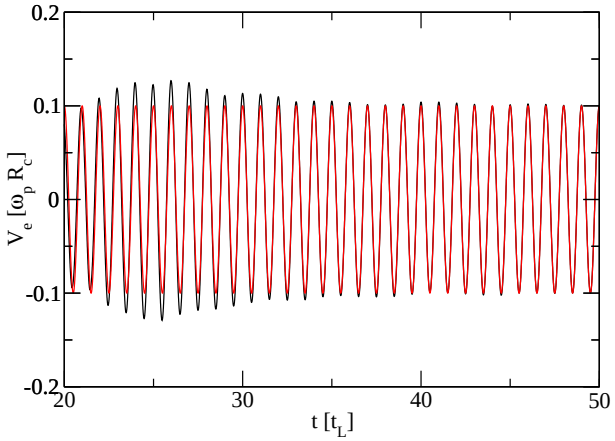


Abbildung 3.28: Simulierte Schwerpunktsgeschwindigkeit und Funktion (3.57) nach dem Durchlaufen des kritischen Radius.

produkten

$$\begin{aligned} a_c(n) &= \frac{\omega_L}{2\pi}\int_{2\pi n/\omega_L}^{2\pi(n+1)/\omega_L} dt\ \cos(\omega_L t) v_n \sin(\omega_L t + \phi_n) \\ &= \frac{v_n}{2}\sin(\phi_n) \end{aligned} \tag{3.59}$$

$$\begin{aligned} a_s(n) &= \frac{\omega_L}{2\pi}\int_{2\pi n/\omega_L}^{2\pi(n+1)/\omega_L} dt\ \sin(\omega_L t) v_n \sin(\omega_L t + \phi_n) \\ &= \frac{v_n}{2}\cos(\phi_n) \end{aligned} \tag{3.60}$$

über eine Laserperiode berechnet werden. Durch Normierung kann die Amplitude eliminiert werden, und es gilt

$$\sin\phi_n = \frac{a_c(n)}{\sqrt{a_c^2(n)+a_s^2(n)}} \quad \text{und} \quad \cos\phi_n = \frac{a_s(n)}{\sqrt{a_c^2(n)+a_s^2(n)}}. \tag{3.61}$$

In Abbildung 3.29 sind diese beiden Funktionen dargestellt. Bei der Interpretation der Phase muß man die negative Elektronenladung beachten: In der quasistatischen Lösung (3.56) ist die Phase wegen des Vorzeichens $3\pi/2$, in der quasifreien Lösung (3.57) $\pi/2$. Im Resonanzfall beträgt die Phasenverschiebung π. In Abbildung 3.29 liest man an der Nullstelle der Sinuskurve ab, daß die Resonanz in der elften Laserperiode erreicht wird, also zu ungefähr dem Zeitpunkt, zu dem auch der kritische Radius überschritten wird. Der Kosinus nimmt an dieser Stelle den Wert -1 an, die Phase hat also den korrekten Wert π. Die ersten Schwingungen werden von einer freien Mie-Oszillation überlagert, sodaß die anhand von (3.61) berechnete Phase dort etwas vom erwarteten Wert $\pi/2$ abweicht.

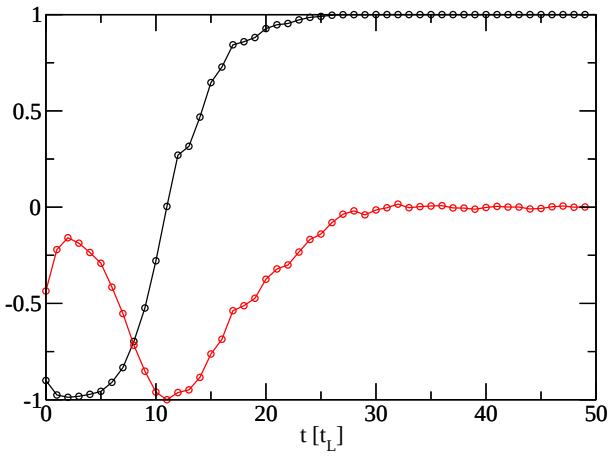


Abbildung 3.29: Sinus (schwarz) und Kosinus (rot) der Phasenverschiebung ϕ zwischen Laserfeld und Geschwindigkeit.

Mit der resonanten Anregung der kollektiven Dipolschwingung wird in [28] und [39] das Auftreten der hohen Ladungszustände der Ionen erklärt. Insbesondere in [28] äußert sich dies durch eine große Dämpfung. Im Ausblick auf das nächste Kapitel kann gesagt werden, daß der Einfluß der Resonanz auf die äußeren Absorptionsprozesse gering ist. Da für die Untersuchung der Resonanz viele Elektronen im Cluster gefangen bleiben müssen, darf nur ein sehr schwaches Laserfeld $E_L \ll E_c$ anliegen; im Falle starker Felder $E_L \approx E_c$ wird die Resonanzabsorption durch die äußere Ionisation überlagert.

Kapitel 4

Absorption im Laserfeld

In diesem Kapitel wird die Absorption eines intensiven Laserpulses durch das Clusterplasma diskutiert. Der Schwerpunkt liegt auf der Absorption durch Prozesse, die außerhalb des Clusters stattfinden: Die elektrische Aufladung des Clusters durch die Befreiung von Elektronen aus seinem Potential, äußere Ionisation genannt, und die Energieabsorption der befreiten Elektronen.

Im Zusammenhang mit dem Gleichgewicht des Clusterplasmas bei angelegtem elektrischem Feld werden zwei Polarisationseffekte beschrieben: Zum einen die mit der Verschiebung der Elektronendichte verbundene Abschirmung des Feldes im Cluster und zum anderen das von den äußeren Elektronen im Cluster erzeugte Feld.

Die Absorption durch äußere Ionisation an Festkörperoberflächen wurde von Brunel vorgeschlagen [41]. Erweiterungen auf dünne Folien und Zylinder wurden anhand von PIC-Simulationen studiert [25],[42]. Den dreidimensionalen Fall eines sphärischen Plasmas behandelt die Arbeit [43], wo der Elektronenstrom durch die Clusteroberfläche im externen Laserfeld berechnet wird.

In dieser Arbeit wird der äußere Ionisationsgrad in einem quasistatischen Modell der Elektronenpopulation im Cluster berechnet. Dies geschieht zunächst für festgehaltene Ionen. Dann wird das gefundene Ergebnis auf bewegliche Ionen erweitert.

Mit der Aufladung des Clusters steigt die potentielle Energie der Ionen stark an und entlädt sich in einer Coulomb-Explosion. Die Energieverteilung der Ionen ähnelt derjenigen, die sich aus der freien Expansion aus einem thermischen Anfangszustand ergibt, und wurde experimentell gemessen [29].

Zum Schluß werden die aus der Simulation erhaltenen Elektronenspektren vorgestellt. Mögliche Absorptionsprozessen, die diese Verteilungen erzeugen, sind die inverse Bremsstrahlungsabsorption bei Stößen mit den Clusteratomen [22] und im Clusterpotential [44].

In der Arbeit [45] wird ein stoßfreier Resonanzmechanismus mit einer zeitabhängigen Laserfrequenz untersucht. Die in der vorliegenden Arbeit gefundenen Spektren zeigen keine Anzeichen für eine Resonanzabsorption; die Ausdehnung der Ionen beeinflußt die Energieverteilung nur wenig. Die Spektren können für hohe Laserintensität im Rahmen eines quasistatischen Modells aus der Atomphysik [46] verstanden werden.

4.1 Absorption mit starren Ionen

Es wird die Absorption ohne Bewegung der Ionen untersucht. In diesem Fall kann der äußere Ionisationsgrad nach der Wechselwirkung analytisch angegeben werden, weil er nur von der Laseramplitude und nicht von der Pulsdauer abhängt.

4.1.1 Quasistatisches Gleichgewicht im Laserfeld

Zuerst wird eine exakte Gleichgewichtskonfiguration des elektrostatischen Clustermodells im konstanten elektrischen Feld beschrieben. In früheren Arbeiten wurden approximative Gleichgewichte angegeben [43]. Die Gleichgewichtskonfiguration hängt zunächst nicht mit der in Teil 3.5 angegebenen quasistatischen Bewegung des Schwerpunkts zusammen: Die im Teil 3.5 besprochene Bewegung des Schwerpunkts kann als Kräftegleichgewicht zwischen Rückstellkraft der Ionen und dem Laserfeld aufgefaßt werden. In diesem Abschnitt wird gefordert, daß das elektrische Feld innerhalb des Clusters verschwindet.

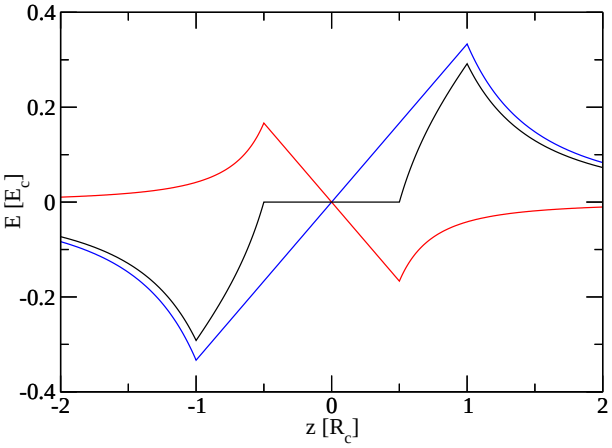
Ohne äußeres Feld sammeln sich die Elektronen im Zentrum der Ionenkugel, sodaß sich die Ladungsdichten dort kompensieren. Die Ladungsdichten von N_i Ionen und N_e Elektronen bilden zwei homogene Vollkugeln mit Radien R_c und R_e:

$$n_i(r) = \begin{cases} Q_i \frac{3N_i}{4\pi R_c^3} & r \le R_c \\ 0 & r > R_c \end{cases} \tag{4.1}$$

$$n_e(r) = \begin{cases} Q_e \frac{3N_e}{4\pi R_e^3} & r \le R_e \\ 0 & r > R_e \end{cases} \tag{4.2}$$

Da im Gleichgewicht keine Kräfte auf die Elektronen wirken, muß das Feld in der Elektronenkugel verschwinden. Also kompensieren sich Elektronen- und Ionenladungsdichten, und man erhält folgende Beziehung zwischen dem Radius R_e der Elektronenkugel und den Teilchenzahlen:

$$-Q_e \frac{N_e}{R_e^3} = Q_i \frac{N_i}{R_c^3} \equiv \frac{Q_c}{R_c^3}. \tag{4.3}$$



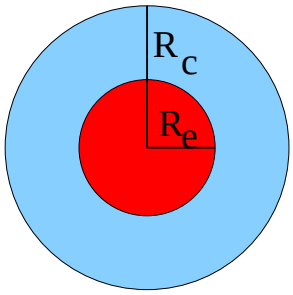


Abbildung 4.1: Feld der Ionenkugel (blau), Elektronenkugel (rot) und Gesamtfeld (schwarz) ohne äußeres Feld. Der Radius der Elektronenkugel beträgt $R_c/2$.

Eine homogene Vollkugel mit Ladung Q und Radius R erzeugt das elektrische Feld

$$\boldsymbol{E} = \begin{cases} \frac{Q}{R^3}\boldsymbol{r} & r \leq R \\ \frac{Q}{r^3}\boldsymbol{r} & r > R \end{cases} . \tag{4.4}$$

Das Gesamtfeld von Elektronen- und Ionenkugel lautet dann

$$\boldsymbol{E} = \begin{cases} 0 & r \leq R_e \\ Q_c \left(\frac{\boldsymbol{r}}{R_c^3} - \frac{R_e^3}{R_c^3}\frac{\boldsymbol{r}}{r^3} \right) & R_e < r \leq R_c \\ Q_c \left(1 - \frac{R_e^3}{R_c^3} \right) \frac{\boldsymbol{r}}{r^3} & r > R_c \end{cases} . \tag{4.5}$$

Dieses Feld zeigt Abbildung 4.1.

Ein konstantes äußeres Feld E_L verschiebt die Elektronenkugel um eine Strecke x_e gegen die Ionenkugel, siehe Abbildung 4.2 links: in dem sichelförmigen Bereich, der über die Ionen herausragt, herrscht jetzt ein elektrisches Feld, sodaß die dortigen Elektronen den Cluster verlassen. Dies geschieht aufgrund der kleinen Elektronenmasse sehr schnell, wenn auch ein Teil der Elektronen im Potential außerhalb des Clusters gefangen bleiben. Ihr Einfluß wird hier ignoriert, er ist Gegenstand des nächsten Abschnitts. Die im Cluster verbliebenen Elektronen sammeln sich in einer kleineren, gegen die Ionen verschobenen Kugel, siehe Abbildung 4.2 rechts.

Innerhalb dieser kleineren Kugel besteht das Feld aus dem der Ionen, dem der verschobenen Elektronenkugel und dem äußeren Feld, also

$$\boldsymbol{E}_{ges} = \boldsymbol{E}_{ind} + \boldsymbol{E}_L \tag{4.6}$$

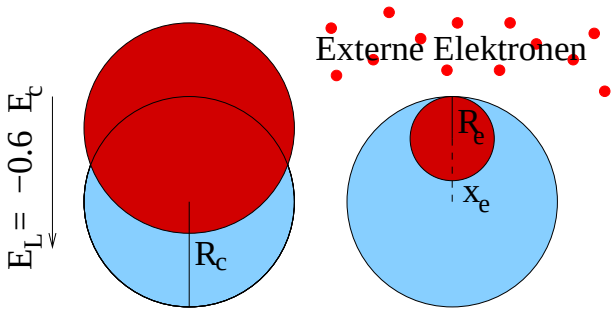


Abbildung 4.2: Bei angelegtem äußerem Feld E_L wird die Elektronenkugel (rot) gegen die Ionenkugel (blau) verschoben (links). Die Elektronen in der Sichel verlassen den Cluster, und *innerhalb* stellt sich der rechte Gleichgewichtszustand ein. Die im Potential außerhalb des Clusters gefangenen "externen"Elektronen erzeugen das in Teil 4.1.2 diskutierte Feld.

mit

$$\boldsymbol{E}_{ind} = \frac{Q_c}{R_c^3}\boldsymbol{r} - \frac{Q_c}{R_c^3}(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{x}_e) = \frac{Q_c}{R_c^3}\boldsymbol{x}_e. \tag{4.7}$$

Dabei werden Felder von außerhalb des Clusters befindlichen Elektronen zunächst vernachlässigt. Die kleinere Kugel ist feldfrei, wenn die Verschiebung der Elektronenkugel

$$\boldsymbol{x}_e = -\frac{R_c^3}{Q_c}\boldsymbol{E}_L \tag{4.8}$$

beträgt. In diesem Fall kompensiert das konstante Feld $\boldsymbol{E}_{ind}$ in der verschobenen Elektronenkugel das äußere Feld, siehe auch Abbildung 4.3. Dieses Gleichgewicht ist zur quasistatischen Bewegungsgleichung (3.54) äquivalent, wenn man dort die Beschleunigung $\ddot{Z}_e$ auf Null setzt.

Aus den Simulationsdaten kann das durch die Ladungsverschiebung im Cluster induzierte Feld (4.7) bestimmt werden, indem man die potentielle Energie gegen den Ort der Elektronen innerhalb des Clusters aufträgt. Weil das Feld (4.7) konstant ist, liegt ein lineares Potential vor, und das Feld E_{ind} kann mithilfe einer Regressionsgeraden bestimmt werden, siehe Abbildung 4.4:

$$U(z) = U_0 - Q_e\, E_{ind,z}\, z. \tag{4.9}$$

Wie in Abbildung 4.5 zu erkennen, ist das induzierte Feld $\boldsymbol{E}_{ind}$ dem angelegten Laserfeld immer gerade entgegengerichtet.

Eine Gleichgewichtskonfiguration in Form einer homogenen Kugel der Elektronen im Cluster wurde in PIC-Simulationen [24] festgestellt.

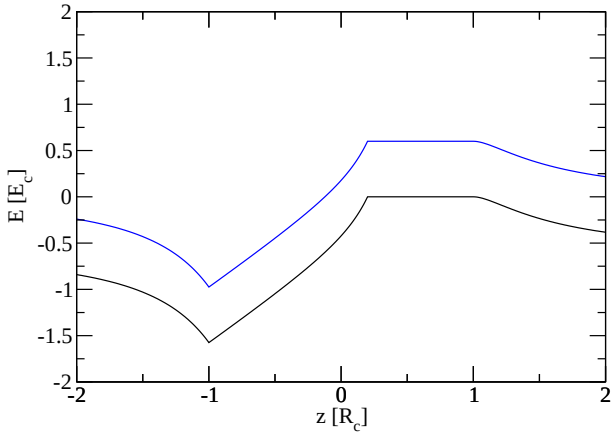


Abbildung 4.3: Elektrisches Feld des Clusters im äußeren Feld $E_L = -0.6E_c$ (blau) und Gesamtfeld (schwarz) zur Konfiguration in Abbildung 4.2 rechts.

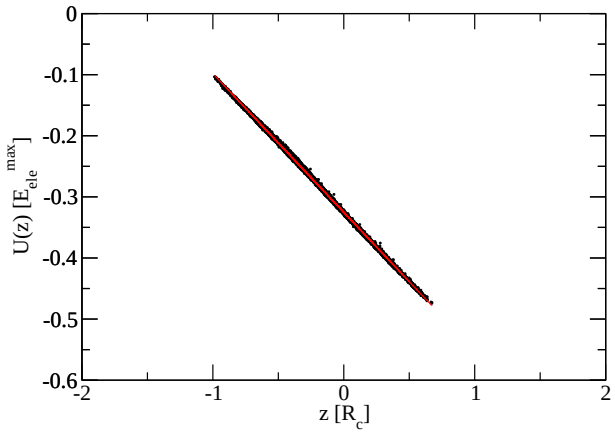


Abbildung 4.4: Potentielle Energie der Elektronen im Cluster (Punkte) und Regressionsgerade zur Feldbestimmung.

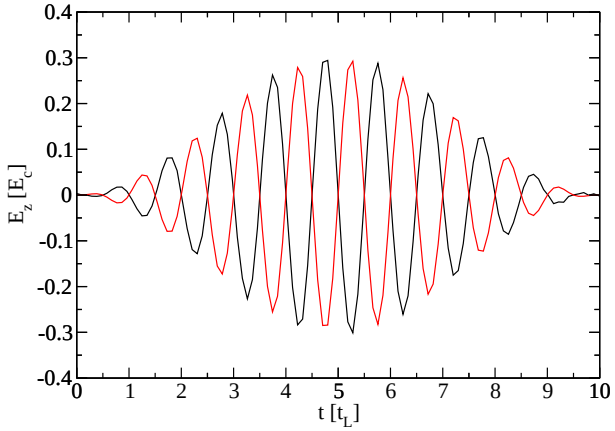


Abbildung 4.5: Laserfeld (rot) und durch die Ladungsverschiebung induziertes Feld des Clusters (schwarz) in einem $\sin^2$-förmigen Puls mit der Amplitude $0.3E_c$. Das induzierte Feld kompensiert das Laserfeld.

4.1.2 Externe Polarisation

Die Elektronen außerhalb des Clusters erzeugen in seinem Inneren ein weiteres elektrisches Feld, daß zu einer kleinen Korrektur der Gleichgewichtsbedingung (4.8) führt. Dort wurde nur das von den im Cluster liegenden Elektronen erzeugte Verschiebungsfeld berücksichtigt. Wenn sich die externen Elektronen aus dem sichelförmigen Bereich in Abbildung 4.2 links noch nicht vom Cluster entfernt haben, kann das von ihnen im Cluster erzeugte Feld nicht vernachlässigt werden, und Gleichung (4.6) muß modifiziert werden:

$$\boldsymbol{E}_{ges} = \boldsymbol{E}_{ind} + \boldsymbol{E}_L + \boldsymbol{E}_p^{ext}. \tag{4.10}$$

Dabei stellt $\boldsymbol{E}_p^{ext}$ das zusätzliche von den äußeren Elektronen erzeugte Feld dar. Im Folgenden wird gezeigt, daß es näherungsweise homogen ist, sodaß die korrigierte Gleichgewichtsbedingung

$$\boldsymbol{x}_e = -\frac{R_c^3}{Q_c}\left(\boldsymbol{E}_L + \boldsymbol{E}_p^{ext}\right) \tag{4.11}$$

lautet. Das Feld $\boldsymbol{E}_p^{ext}$ kann wie folgt im Rahmen einer Multipolentwicklung berechnet werden.

Bei vorgegebener Ladungsverteilung $\rho_{ext}(\boldsymbol{r}')$ der äußeren Elektronen lautet das von ihnen im Cluster erzeugte Potential

$$\phi_{ext}(\boldsymbol{r}) = \int_{r'>R_c} d^3r' \, \frac{\rho_{ext}(\boldsymbol{r}')}{|\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'|}. \tag{4.12}$$

Mit der Darstellung durch Kugelfunktionen Y_{lm} [47]

$$\frac{1}{|\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'|} = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{l} \frac{4\pi}{2l+1} \frac{r_<^l}{r_>^{l+1}} Y_{lm}(\vartheta,\varphi) Y_{lm}^*(\vartheta',\varphi') \tag{4.13}$$

erhält man dann eine Multipolenwicklung des Potentials ϕ_{ext}. Anders als bei der üblichen Multipolentwicklung liegen die Ladungen aber nicht innerhalb, sondern außerhalb des Gebiets, in dem das Potential berechnet werden muß. Das heißt, daß hier $r_< = |\boldsymbol{r}|$ und $r_> = |\boldsymbol{r}'|$ gilt. Damit lautet die Multipolentwicklung

$$\phi(\boldsymbol{r}) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{l} M_{lm}^{ext} r^l Y_l(\vartheta,\varphi) \tag{4.14}$$

mit den Multipolmomenten

$$M_{lm}^{ext} = \frac{4\pi}{2l+1} \int_{r'>R_c} d^3r' \, \frac{Y_{lm}^*(\vartheta',\varphi')\rho_{ext}(\boldsymbol{r}')}{r'^{l+1}} \; . \tag{4.15}$$

für die Ladungsverteilung ρ_{ext} außerhalb des Clusters. Der Term nullter Ordnung ist konstant,

$$\phi_0 = \int_{r'>R_c} d^3r' \, \frac{\rho_{ext}(\boldsymbol{r}')}{r'} \; , \tag{4.16}$$

und der Term erster Ordung zu $l = 1$ kann mit der Identität

$$\frac{4\pi}{3} \sum_{m=-1}^{1} r Y_{1m}(\vartheta,\varphi) \, r' Y_{1m}^*(\vartheta',\varphi') = \boldsymbol{r}\cdot\boldsymbol{r}' \tag{4.17}$$

zum linearen Potential

$$\phi_1(\boldsymbol{r}) = -\boldsymbol{r}\cdot\boldsymbol{E}_p^{ext} \tag{4.18}$$

umgeformt werden. Dabei ist

$$\boldsymbol{E}_p^{ext} = -\nabla\phi_1(\boldsymbol{r}) = -\int_{r'>R_c} d^3r' \, \frac{\boldsymbol{r}'\rho_{ext}(\boldsymbol{r}')}{r'^3} \tag{4.19}$$

ein von den äußeren Elektronen im Cluster erzeugtes homogenes elekrische Feld. Es kann direkt aus den Positionen der Simulationsteilchen bestimmt werden und macht sich besonders in den Maxima des Laserfeldes bemerkbar, wenn ein Teil der Elektronenkugel wie in Abbildung 4.2 aus dem Cluster herausgeschoben wird. Abbildung 4.6 zeigt die z-Komponente des Feldes $\boldsymbol{E}_p^{ext}$ in einem $\sin^2$-förmigen Laserpuls.

Das externe Feld $\boldsymbol{E}_p^{ext}$ hängt nichtlinear vom Laserfeld ab; in den Maxima des Laserfeldes zeigt es scharfe Spitzen. Die Berücksichtigung dieses Feldes in der Gleichgewichtsbedingung (4.8) erlaubt es, die Bahn des inneren Elektronenschwerpunkts im Laserfeld mit hoher

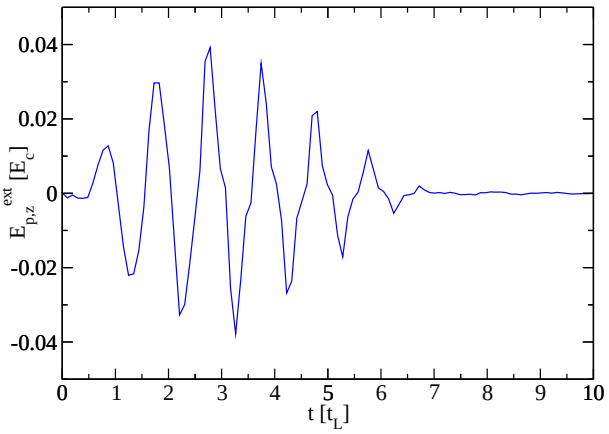


Abbildung 4.6: Das von den äußeren Elektronen im Cluster erzeugte Feld (4.19) in einem Puls mit 10 Zyklen der Amplitude $0.3E_c$.

Genauigkeit zu reproduzieren. Abbildung 4.7 zeigt die z-Komponente des Schwerpunkts im Laserfeld (4.8) ohne Korrektur und mit dem korrigierten Feld

$$z_e = -\frac{R_c^3}{Q_c}(E_L + E_{p,z}^{ext}). \tag{4.20}$$

Man stellt also fest, daß es zwei konkurrierende Beschreibungen der Bewegung des Elektronenschwerpunkts im Cluster bei angelegtem Laserfeld gibt: Zum einen die in Teil 3.5 aus der Oszillatorgleichung abgeleitete quasistatische Form (3.54) und zum anderen die Gleichung (4.8) oder, bei Berücksichtigung des externen Polarisationsfeldes, Gleichung (4.20), die sich aus der Forderung der Feldfreiheit der Elektronenkugel im Cluster ergibt. Im Fall kleiner Laserfrequenz $\omega_L < \omega_{Mie}$ führen dynamisches und elektrostatisches Gleichgewicht zur gleichen Schwerpunktsbewegung.

4.1.3 Äußere Ionisation

Die in Abbildung 4.2 links dargestellte Konfiguration ist nicht stabil, weil das Feld in der Kappe, die über die Ionenkugel herausragt, nicht verschwindet. Alle dort befindlichen Elektronen verlassen den Cluster. Übrig bleibt eine kleinere Elektronenkugel, die sich im Gleichgewicht mit dem äußeren Feld und dem der Ionen befindet. Ihre Auslenkung $\boldsymbol{x}_e$ ist durch Gleichung (4.8) gegeben. Das Polarisationsfeld der äußeren Elektronen wird nicht berücksichtigt, weil es deutlich kleiner als die Laseramplitude ist, siehe Abbildung 4.6.

Unter der Annahme, daß die kleinere Elektronenkugel bei maximaler Auslenkung gerade bis zum Rand der Ionenverteilung reicht, kann ihr Radius R_e angegeben werden, siehe auch

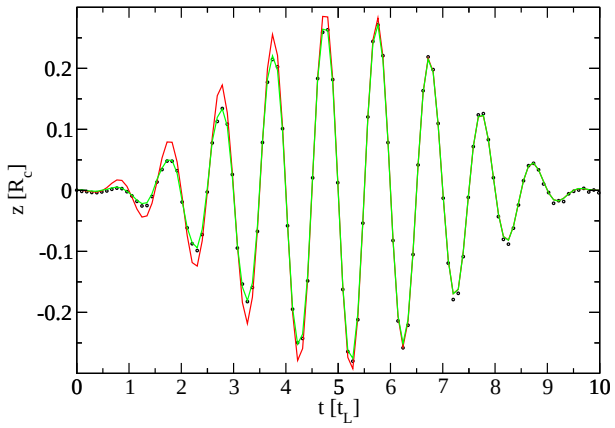


Abbildung 4.7: Schwerpunkt der Elektronen (Punkte) im Laserfeld und Gleichung (4.8) (rot) und (4.20) (grün).

Abbildung 4.2 rechts:

$$R_e = R_c - |\boldsymbol{x}_e|. \tag{4.21}$$

Das Volumenverhältnis von Elektronen- und Ionenkugel entspricht gerade dem Anteil Elektronen, die im Cluster bleiben. Der Anteil, der durch das Feld freigesetzt wurde, ist also gerade der äußere Ionisationsgrad α:

$$\alpha = 1 - \left(\frac{R_e}{R_c}\right)^3 \tag{4.22}$$

Die Kombination dieser Gleichung mit Gleichungen (4.8) und (4.21) ergibt den äußeren Ionisationsgrad als Funktion des externen Felds:

$$\alpha(E_L) = 1 - \left(1 - \frac{E_L}{E_c}\right)^3. \tag{4.23}$$

Dabei ist $E_c = Q_c/R_c^2$ das von den Ionen erzeugte Feld am Clusterrand. Bei einem zeitabhängigen externen Feld ist für E_L dessen Amplitude einzusetzen, weil diese die maximale Verschiebung der Elektronen über den Clusterrand bestimmt.

Gleichung (4.23) besagt, daß der Cluster vollständig ionisiert wird, wenn die Amplitude des Laserfelds das Feld am Rand der Ionenkugel überschreitet. Bei dieser Amplitude werden zwar nicht alle Elektronen aus dem Cluster herausgeschoben, aber der Radius der Elektronenkugel in Gleichung (4.21) verschwindet, sodaß kein Gleichgewicht dieser Gestalt mehr existiert.

Die Simulation bestätigt die Vorhersage von Gleichung (4.23), wie in Abbildung 4.8 ersichtlich. Die Punkte zeigen den äußeren Ionisationsgrad nach der Wechselwirkung mit

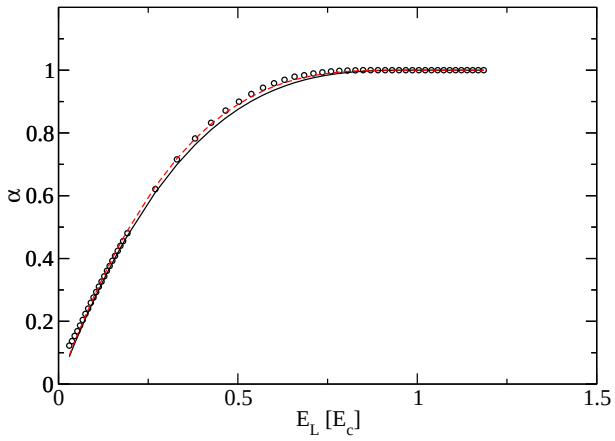


Abbildung 4.8: Äußerer Ionisationsgrad nach der Wechselwirkung mit einem Laserpuls mit 40 Zyklen als Funktion der Laseramplitude: Simulation (Punkte), Gleichung (4.22) (schwarze Kurve) und angepaßte Kurve mit $E_L \to \eta E_L, \eta = 1.04$.

einem Laserpuls mit 40 Zyklen. Die schwarze Kurve stellt die Funktion (4.23) dar. Die rote Kurve ist das Ergebnis der Anpassung einer Funktion der Form (4.23), wobei für das externe Feld ηE_L mit einem Paramter η eingesetzt wurde. Für $\eta = 1.04$, eine Abweichung um 4% im externen Feld in (4.23), stimmt das Simulationsergebnis gut mit Gleichung (4.23) überein.

4.1.4 Potentielle Energie

Nach der Wechselwirkung mit dem Laser kehren die gefangenen Elektronen in das Zentrum des Clusters zurück, sodaß sich der in Abbildung 4.1 gezeigte Endzustand einstellt, in dem der Cluster effektiv aus einer homogen geladenen Kugelschale $R_e < r < R_c$ besteht. Da das elektrische Feld des Systems dann durch Gleichung (4.5) gegeben ist, kann die potentielle Energie des Systems durch Integration der elektrischen Energiedichte berechnet werden:

$$E_{pot} = \frac{1}{8\pi} \int \boldsymbol{E}^2 \, dV. \tag{4.24}$$

Das Ergebnis, ausgedrückt durch die potentielle Energie $U_c = 3Q_c^2/5R_c$ der homogenen Ionenkugel, lautet

$$E_{pot} = U_c \frac{1}{2} \left(2 + 3 \left(\frac{R_e}{R_c} \right)^5 - 5 \left(\frac{R_e}{R_c} \right)^3 \right). \tag{4.25}$$

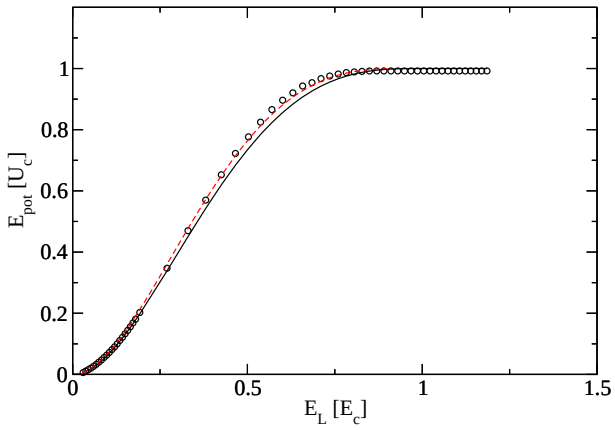


Abbildung 4.9: Potentielle Energie des Clusters nach dem Laserpuls mit 40 Zyklen als Funktion der Laseramplitude: Simulation (Punkte), Gleichung (4.26) (schwarze Kurve) und Gleichung (4.26) mit $\eta = 1.04$.

Drückt man das Radienverhältnis mithilfe der Gleichungen (4.8) und (4.21) durch das externe Feld aus, so lautet die potentielle Energie

$$E_{pot}(E_L) = U_c \frac{1}{2}\left(2 + 3\left(1 - \frac{E_L}{E_c}\right)^5 - 5\left(1 - \frac{E_L}{E_c}\right)^3\right) \tag{4.26}$$

als Funktion der Laseramplitude. Abbildung 4.9 zeigt die potentielle Energie nach der Laserwechselwirkung aus der Simulation (Punkte) zusammen mit der Funktion (4.26) (schwarz) und derselben Funktion, wobei für die Laseramplitude der im vorherigen Abschnitt gefundene Wert $1.04E_L$ eingesetzt wurde.

4.2 Einfluß der Ionenbewegung

Die Ionenbewegung hat großen Einfluß auf die Absorption durch äußere Ionisation in längeren Laserpulsen. Wenn die Ionen sich während des Pulses deutlich ausdehnen, sinkt die zur vollständigen Ionisation des Clusters nötige Laseramplitude deutlich ab, weil das Feld E_i am Rand der Ionenkugel mit ihrem Radius $R(t)$ abnimmt: Es gilt

$$E_i(t) = \frac{Q_c}{R^2(t)} = E_c \frac{R_c^2}{R^2(t)}. \tag{4.27}$$

Abbildung 4.10 stellt den äußeren Ionisationsgrad als Funktion der Laseramplitude für einen Puls mit 40 und einen Puls mit 20 Zyklen dar. Die Simulationsionen haben die inverse spezifische Ladung $2.41 \cdot 10^4 m_e/e$ von zehnfach ionisiertem Xenon. Im Vergleich zu

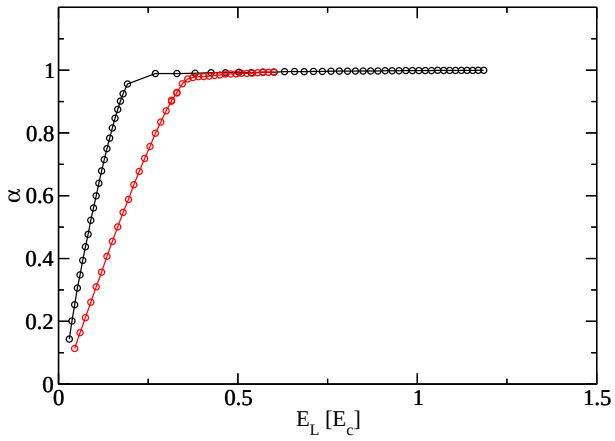


Abbildung 4.10: Äußerer Ionisationsgrad als Funktion der Laseramplitude für Pulse mit 40 (schwarz) und 20 (rot) Zyklen.

Abbildung 4.8 erscheint der Anstieg der Kurve steiler, und sie erreicht die Sättigung für kleinere Werte der Laseramplitude E_L. Im längeren Puls ist dieser Effekt stärker. Um zu belegen, daß dies durch den Abfall der Ionisationsschwelle gemäß (4.27) zustande kommt, muß der zeitabhängige Ionenradius in der Formel (4.22) berücksichtigt werden. Wegen der $\sin^2$- förmigen Einhüllenden des Laserpulses wird das maximale Laserfeld in der Mitte des Pulses, also bei $t_L/2$, durchlaufen; der zu diesem Zeitpunkt erreichte Ionenradius $R(t_L/2)$ muß in (4.27) eingesetzt werden. Dieser Radius wird wieder als Maximalabstand der Ionen vom Ursprung aus den Simulationsdaten abgelesen. In Kombination mit (4.22) erhält man den Ionisationsgrad

$$\alpha = 1 - \left(1 - \frac{R^2(t_L/2)}{R_c^2}\frac{E_L}{E_c}\right)^3 \tag{4.28}$$

Abbildung 4.11 zeigt, daß sich die Ionen in der Mitte des Pulses deutlich ausgedehnt haben. Die korrigierte Form (4.28) des Ionisationsgrads beschreibt seinen steileren Anstieg, siehe Abbildung 4.12. Wie im Fall starrer Ionen kann die Übereinstimmung mit den Simulationsergebnissen verbessert werden, wenn man die Laseramplitude in (4.28) durch ηE_L mit einem Parameter η ersetzt. Für $\eta = 0.8$ stimmt die Funktion (4.28) gut mit dem Simulationsergebnis überein. Im Allgemeinen ist der simulierte Ionisationsgrad kleiner als die Vorhersage (4.28), was auf das Wiedereinfangen von Elektronen während der Expansion zurückgeführt werden kann. Dies ist von der Expansion ohne Laserfeld bekannt.

Offenbar muß zum Verständnis der äußeren Ionisation mit expandierenden Ionen nicht der Resonanzmechanismus herangezogen werden. In Abbildung 4.11 erkennt man, daß sich die Ionen in der Mitte des Laserpulses mit 40 Zyklen ab einer Amplitude von $3/4E_c$ über

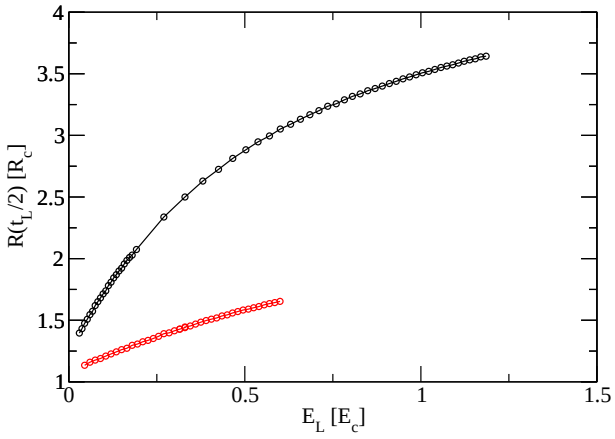


Abbildung 4.11: Radius der Ionenkugel in der Mitte des Pulses mit 40 (schwarz) und 20 (rot) Zyklen.

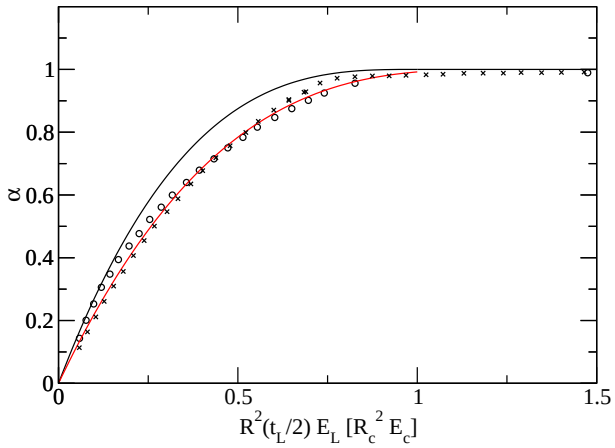


Abbildung 4.12: Um die Expansion korrigierter Ionisationsgrad im Puls mit 40 (Kreise) und 20 (Kreuze) Zyklen. Funktion (4.28) ohne (schwarz) und mit Variationsparameter $\eta = 0.8$ (rot).

den kritischen Radius von $3.22R_c$ (siehe auch Teil 3.5; die Laserfrequenz beträgt auch hier $0.1\omega_p$) ausgedehnt haben. Dennoch kann der steilere Anstieg des Ionisationsgrads wie beim Puls mit 20 Zyklen durch den Abfall der Ionisationsschwelle erklärt werden, der durch die Expansion hervorgerufen wird.

Die Expansion der Ionen während des Laserpulses ist im elektrostatischen Clustermodell dafür verantwortlich, daß die Schwellenintensität der vollständigen äußeren Ionisation von $I_c \sim 10^{18}\mathrm{W/cm^2}$ auf den im Vergleich zu Experimenten realistischeren Wert von $\sim 10^{16}\mathrm{W/cm^2}$ reduziert wird.

4.3 Energieverteilung der Ionen

Wie bei der Expansion des Clusterplasmas aus einem thermischen Anfangszustand ohne Laserfeld bestimmt im wesentlichen der äußere Ionisationsgrad die Gestalt der Ionenenergiespektren. Die im Cluster verbleibenden Elektronen konzentrieren sich im Zentrum, sodaß dort keine Raumladungsdichte und kein Feld entsteht. Der Kern expandiert langsam, während die geladene Ionenschale eine Coulomb-Explosion durchläuft.

Das Spektrum kann wiederum als eine Überlagerung von Maxwell- und wurzelförmiger Verteilung dargestellt werden:

$$f_i(E) = N_s\sqrt{\frac{E}{T_s}}\mathrm{e}^{-\frac{E}{T_s}} + N_{cb}\sqrt{\frac{E}{E_{cb}}} \tag{4.29}$$

mit Normierungsfaktoren N_s für die langsame und N_{cb} für die schnelle Komponente. Die langsame Komponente wird durch ihre Temperatur T_s, die schnelle durch die Maximalenergie E_{cb} charakterisiert. Abbildung 4.13 zeigt ein simuliertes Spektrum zusammen mit der Funktion (4.29). Der Laserpuls besitzt 40 Zyklen und die Amplitude $E_L = 0.125E_c$, und die inverse spezifische Ionenladung beträgt $2.41\cdot 10^4 m_e/e$, entsprechend zehnfach geladenen Xenonionen.

Die schnelle Komponente stimmt qualitativ mit experimentellen Ergebnissen überein [29]. Ihr flacher Verlauf ist für den Ablauf von Fusionsreaktionen bei Stößen zwischen den Explosionsprodukten wichtig [20].

Die langsame Komponente fällt deutlich enger aus als bei der Expansion ohne Laserfeld. Dies deutet darauf hin, daß die im Cluster gefangenen Elektronen im Laserfeld wenig Energie absorbieren, sodaß bei der anschließenden Ausdehnung weniger Energie zur Übertragung auf die Ionen verfügbar ist.

Die Maximalenergie der Ionen, Abbildung (4.14), verläuft wie bei der Expansion ohne Laserfeld proportional zum äußeren Ionisationsgrad. Dabei ist aber im Vergleich zu Formel

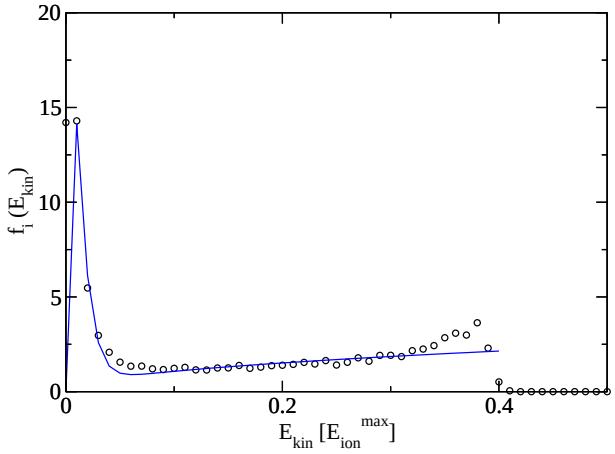


Abbildung 4.13: Energiespektrum der Ionen nach einem Puls mit 40 Zyklen und Funktion(4.29).

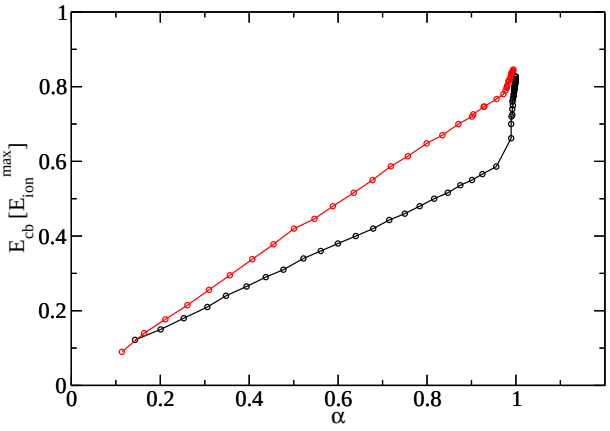


Abbildung 4.14: Maximalenergie der Ionen nach einem Puls mit 40 (schwarz) und 20 (rot) Zyklen als Funktion des äußeren Ionisationsgrads.

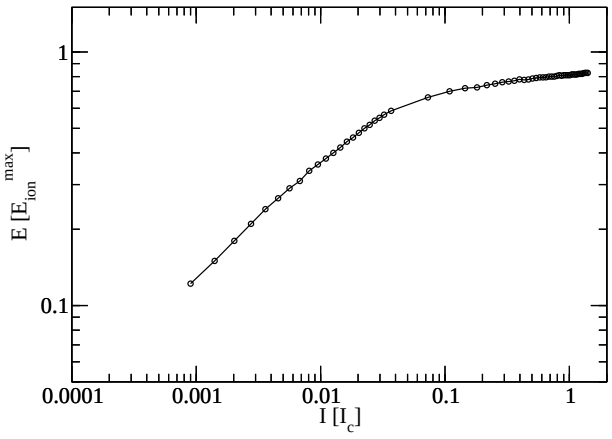


Abbildung 4.15: Maximalenergie der Ionen nach einem Puls mit 40 Zyklen.

(3.47) die Proportionalitätskonstante kleiner als eins. Das kann auf die Expansion des Clusters während der steigenden Flanke des Laserpulses zurückgeführt werden. In dieser Zeit ist der äußere Ionisationsprozess noch nicht abgeschlossen. Die die Expansion treibende Ladung ist gering, und die Ionen nehmen nur wenig Energie auf. Da der endgültige Ionisationsgrad in kürzeren Pulsen gleicher Amplitude schneller erreicht wird, ist dieser Effekt beim Puls mit 40 Zyklen stärker als bei demjenigen mit 20 Zyklen.

Wenn der Cluster vollständig ionisiert wird, steigt die Ionenenergie allein deshalb, weil der Zeitpunkt der vollständigen Ionisation früher im Puls erreicht wird. In Abbildung 4.14 findet man dies im Knick der Kurven bei $\alpha \approx 1$ wieder.

In der Arbeit [19] wurde die Skalierung der maximalen Ionenenergie mit der Laserintensität bei Edelgas-Clustern experimentell bestimmt. Es ergab sich ein steiler Anstieg bei kleinen Intensitäten um $10^{14}\mathrm{W/cm^2}$, mit einem Knick bei $10^{15}\mathrm{W/cm^2}$, gefolgt von einem langsameren Anstieg. Die Simulation reproduziert dieses Verhalten qualitativ, siehe Abbildung 4.15. Für die in der Arbeit [19] angegebenen Clusterparameter gilt

$$E_{ion}^{max} = 175\,\mathrm{keV} \quad \text{und} \quad I_c = 2.3 \cdot 10^{18}\mathrm{W/cm^2}. \tag{4.30}$$

Der in der Simulation verwendete Puls mit 40 Zyklen hat eine Dauer von etwa 90 fs, deutlich kürzer als die in der Arbeit [19] angegebene Pulsdauer von 230 fs. In der Simulation steigt die Ionenenergie von $2 \cdot 10^{15}\mathrm{W/cm^2}$ bis ungefähr $10^{17}\mathrm{W/cm^2}$ steil an, in den Experimenten [19] wird bei $10^{15}\mathrm{W/cm^2}$ das Plateau erreicht. Diese Verschiebung kann auf den kürzeren Puls in der Simulation zurückgeführt werden. Tendenziell verschiebt sich der Knick in der Ionenenergie bei längeren Pulsen zu niedrigeren Intensitäten, wie auch die Sättigung des Ionisationsgrads. Dafür spricht auch, daß in der Simulation höhere Energien auftreten,

wenn die Laserintensität schneller ansteigt, siehe auch Abbildung 4.14.

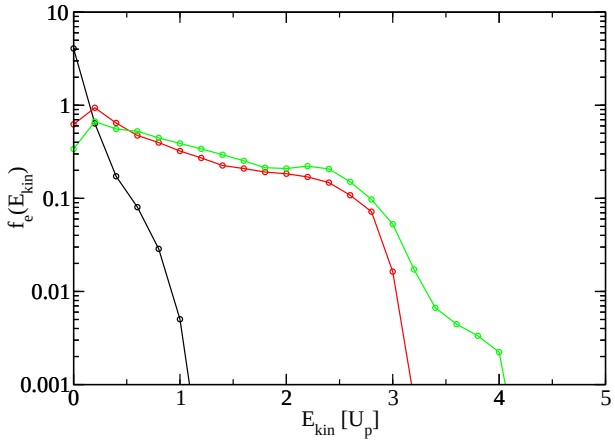


Abbildung 4.16: Energieverteilung der Elektronen für Laseramplituden $0.9E_c$ (schwarz), $0.18E_c$ (rot) und $0.11E_c$(grün).

4.4 Energiespektren der Elektronen

Die aus der Wechselwirkung des Clusters mit einem Laserpuls resultierenden Verteilungen der Elektronenenergien können in zwei Klassen eingeteilt werden: bei kleiner Laseramplitude besitzen sie ein ausgeprägtes Plateau, das bei großen Amplituden verschwindet.

Weil hauptsächlich das Laserfeld die Bewegung eines Elektrons nach seiner Befreiung aus dem Cluster bestimmt, wird in diesem Abschnitt das ponderomotorische Potential

$$U_p = \frac{Q_e^2 E_L^2}{4 M_e \omega_L^2}, \tag{4.31}$$

welches der mittleren Oszillationsenergie eines freien Elektrons im Laserfeld entspricht, als Energieeinheit verwendet.

Abbildung 4.16 zeigt die aus der Simulation mit einem Laserpuls mit 40 Zyklen erhaltenen Energieverteilungen der freien Elektronen für die Laseramplituden $0.11E_c$, $0.18E_c$ und $0.9E_c$.

Bei den Amplituden $0.11E_c$ und $0.18E_c$ findet man ein Plateau, das ungefähr bis zur Energie $2.5U_p$ reicht; bei $0.11E_c$ fällt die Verteilung auf ein zweites Plateau bis $4U_p$ ab. Für die Amplitude $0.9E_c$ zeigt das Spektrum ein schwach ausgeprägtes Knie bei $0.5U_p$.

Anders als der äußere Ionisationsgrad hängt das Auftreten des ersten Plateaus kaum von Pulsdauer und Ionenmasse ab. In Abbildung 4.17 ist die Energie, bei der die Kante des Plateaus auftritt, für verschiedene Pulslängen gegen die Laseramplitude aufgetragen. Die inverse spezifische Ladung der Simulationsionen beträgt $2.41 \cdot 10^4 m_e/e$, was zehnfach ionisiertem Xenon entspricht.

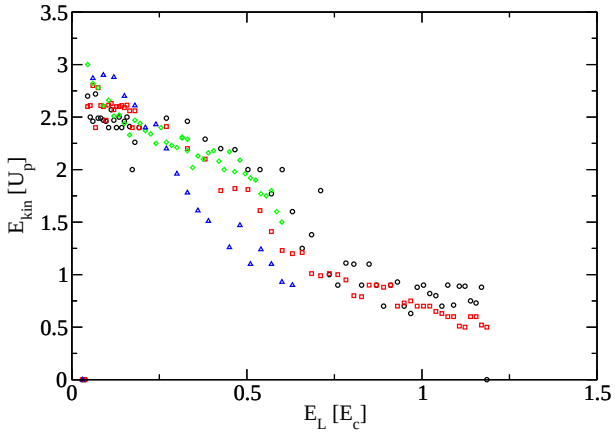


Abbildung 4.17: Kante des Energieplateaus als Funktion der Laseramplitude für Pulse mit 40 (rot), 20 (grün) und 60 (blau) Zyklen. Die schwarzen Punkte entsprechen unendlich schweren Ionen und 40 Zyklen.

Die Kante des Plateaus liegt bis zur Amplitude $0.4E_c$ zwischen $2U_p$ und $3U_p$. Darüber fällt ihre Energie schnell ab; für Amplituden größer als $0.7E_c$ ist sie in den Spektren schwer zu erkennen. Der Abfall der Energie hängt nur schwach von der Pulsdauer und der Trägheit der Ionen ab.

Die schwache Abhängigkeit von der Ionenmasse ist ein Hinweis darauf, daß die Energieverteilung der Elektronen von der Ionenexpansion wenig beeinflußt wird. Insbesondere kann keine deutliche Erhöhung der Elektronenenergien durch eine Resonanz festgestellt werden. Ebenso treten keine Gipfel in den Spektren neben dem Maximum bei Null auf, wie vom Nanoplasma-Modell vorhergesagt [22].

Wie experimentell bestimmte Energieverteilungen [12],[13] können die simulierten Spektren durch eine Überlagerung von zwei Exponentialfunktionen

$$f_e(E) = N_1 \mathrm{e}^{-E/T_1} + N_2 \mathrm{e}^{E/T_2} \tag{4.32}$$

dargestellt werden, wenn das Plateau gut ausgeprägt ist und bei der Energie Null ein Maximum vorliegt. Abbildung 4.18 zeigt die Energieverteilung für die Laseramplitude $0.24E_c$ bei einer Pulsdauer von 40 Zyklen. Für das Beispiel eines zehnfach ionisierten Xenonclusters beträgt die Temperatur der T_1 der kalten Komponente ungefähr 0.8 keV, das Plateau reicht bis zur Energie 8 keV. Diese Werte sind mit experimentell bestimmten vergleichbar [13]. Allerdings kann das Plateau nur bedingt durch eine Exponentialfunktion dargestellt werden; weil es flach verläuft und abrupt abbricht, ist der Parameter T_2 in Gleichung (4.32) in der Regel größer als die Maximalenergie. Er kann also nicht als Temperatur interpretiert

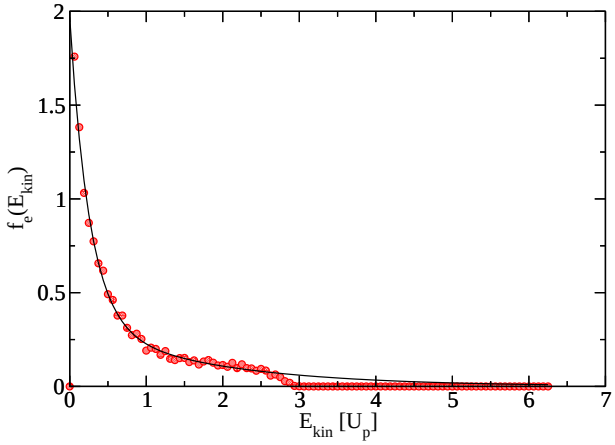


Abbildung 4.18: Energiespektrum (Punkte) und Doppel-Exponentialfunktion (4.32) (schwarz).

werden. Die Abhängigkeit der beiden Parameter T_1 und T_2 in der Modellfunktion (4.32) kann aus dem gleichen Grund nicht zuverlässig ermittelt werden.

4.5 Geschwindigkeitsverteilung

Die Verteilung der Geschwindigkeit in Polarisationsrichtung des Lasers (hier die z-Achse) bildet wie die Energieverteilung bei niedrigen Laseramplituden ein Plateau. Bei hoher Amplitude wird die Verteilung sehr schmal, siehe Abbildung 4.19. Die Geschwindigkeit wurde auf die Zittergeschwindigkeit

$$v_L = \frac{|Q_e|E_L}{M_e\omega_L} \tag{4.33}$$

eines freien Elektrons im Laserfeld normiert.

Die Elektronengeschwindigkeiten sind für kleine Amplituden nahezu gleichmäßig zwischen $-1.1v_L$ und $1.1v_L$ verteilt. Es treten einige wenige Elektronen mit Geschwindigkeiten von bis zu $1.2v_L$ auf. Die Geschwindigkeit $1.1v_L$ entspricht der kinetischen Energie

$$E = \frac{M_e}{2}(1.1v_L)^2 = 2.42U_p, \tag{4.34}$$

also ungefähr der Plateaukante im Energiespektrum.

Ein weiteres Charakteristikum ist die Gestalt der Verteilung bei der Geschwindigkeit Null. Bei Laseramplituden $E_L < 0.27E_c$ bildet die Verteilung dort ein Minimum, bei Amplituden $E_L > 0.27E_c$ ein Maximum. In der Energieverteilung äußert sich dies durch ein amplitudenabhängiges Minimum bei der Energie Null, siehe Abbildung 4.16.

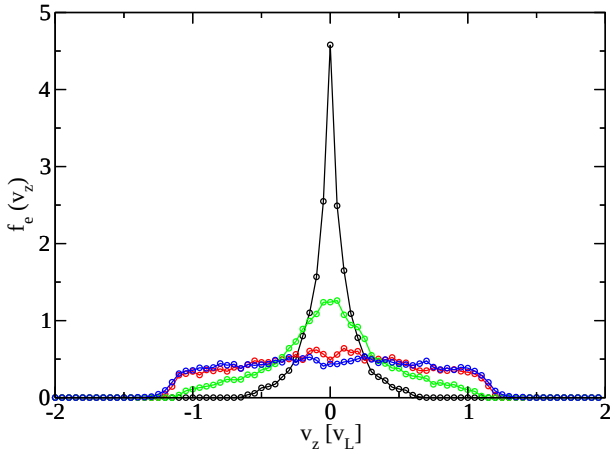


Abbildung 4.19: Geschwindigkeitsverteilung der Elektronen in Polarisationsrichtung des Lasers für die Amplituden $0.9E_c$ (schwarz), $0.105E_c$ (rot), $0.18E_c$ (blau) und $0.27E_c$ (grün).

4.6 Elektronenspektren bei hoher Intensität

Wenn die Laseramplitude so groß ist, daß der Cluster vollständig ionisiert wird, kann das Elektronenspektrum im Rahmen eines quasistatischen Modells der Ionisation verstanden werden. Dieses wurde von Gallagher [48] zur Beschreibung der Ionisation von Atomen in Mikrowellenfeldern benutzt und von Corkum [46] auf die Multiphotonionisation von Atomen in Laserfeldern angewandt.

4.6.1 Das quasistatische Ionisationsmodell

Das quasistatische Ionisationsmodell stellt eine klassische Beschreibung der Multiphotonionisation von Atomen dar. Hier wird es teilweise auf den Cluster übertragen, die Mehrfachstreuung wird vernachlässigt. Dies beschränkt die Anwendbarkeit des Verfahrens auf große Laseramplituden, bei denen alle Elektronen aus dem Cluster befreit werden und nicht mehr zum Cluster zurückkehren.

Die Befreiung eines Elektrons aus dem Cluster wird wie folgt modelliert: Das Elektron erscheint zu einem Zeitpunkt t_0 im Ursprung, wonach seine Bewegung allein durch das Laserfeld bestimmt wird:

$$\ddot{z} = \frac{Q_e}{M_e} E(t) \quad \text{für} \quad t > t_0, \tag{4.35}$$

$$z(t_0) = \dot{z}(t_0) = 0. \tag{4.36}$$

Es wird angenommen, daß die Bewegung in der Polarisationsrichtung des Lasers entlang

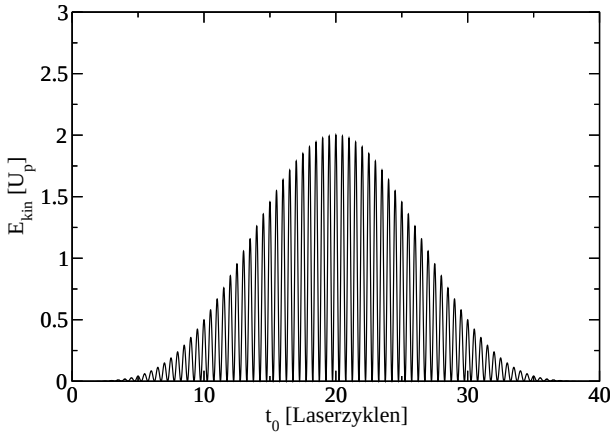


Abbildung 4.20: Driftenergie eines aus dem Cluster befreiten Elektrons als Funktion des Ionisationszeitpunkts.

der z-Achse verläuft. Zur Bestimmung der kinetischen Energie nach dem Abschalten des Lasers wird nur die Geschwindigkeit benötigt, diese lautet

$$\dot{z}(t) \equiv v(t) = \frac{Q_e}{M_e} \int_{t_0}^{t} E(t')\, dt'. \tag{4.37}$$

Hier wird wieder der $\sin^2$-förmige Laserpuls angelegt. Die Retardierung und das Magnetfeld werden vernachlässigt, sodaß der Puls durch

$$E_L(t) = E_0 \sin^2\left(\frac{\omega_L t}{2n_L}\right) \sin \omega_L t \tag{4.38}$$

gegeben ist. Er endet zur Zeit $t_L = 2\pi/\omega_L n_L$. Das Elektron besitzt dann die Driftgeschwindigkeit

$$v_D(t_0) = \frac{Q_e}{M_e} \int_{t_0}^{t_L} E(t')\, dt' \tag{4.39}$$

mit entsprechender kinetischer Energie

$$E_{kin}(t_0) = \frac{M_e}{2} v_D^2, \tag{4.40}$$

mit der es den Detektor erreicht. Abbildung 4.20 zeigt diese kinetische Energie als Funktion des Ionisationszeitpunktes t_0 für den $\sin^2$-förmigen Laserpuls mit 40 Zyklen. Die Energie skaliert mit dem ponderomotorischen Potential $U_p = e^2 E_0^2/(4M_e\omega_L^2)$, wobei E_0 die Laseramplitude ist.

Um das Energiespektrum aller Elektronen zu berechnen, benötigt man die Anzahl der pro Laserperiode freigesetzten Elektronen. Diese Funktion spielt die Rolle der Ionisationswahrscheinlichkeit in der Theorie der Multiphotonionisation von Atomen und wird mithilfe

des vorgestellten Modells der äußeren Ionisation berechnet. Als Funktion des angelegten Feldes E lautet der Ionisationsgrad

$$\alpha = 1 - \left(1 - \frac{E}{E_c}\right)^3, \tag{4.41}$$

wobei E_c das von den Ionen am Clusterrand erzeugte Feld ist. Ein Modell für die Ionisationsrate erhält man, indem man für E die Einhüllende des Laserpulses

$$E_0 \sin^2\left(\frac{\omega_L t}{2n_L}\right) \tag{4.42}$$

einsetzt und diese Funktion nach der Zeit differenziert:

$$\frac{d\alpha}{dt} = \frac{\omega_L}{n_L}\epsilon\left(1 - \epsilon\sin^2\left(\frac{\omega_L t}{2n_L}\right)\right)^2 \sin\left(\frac{\omega_L t}{2n_L}\right)\cos\left(\frac{\omega_L t}{2n_L}\right). \tag{4.43}$$

Dabei ist $\epsilon = E_0/E_c$. Zur Verwendung dieser Funktion als Ionisationswahrscheinlichkeit sind zwei Dinge anzumerken.

Erstens gilt Gleichung (4.41) nur für $E_0 < E_c$, dennoch wird im folgenden deren Ableitung für $E > E_c$ benutzt. Das ist gerechtfertigt, solange die Ableitung positiv ist, also genau bis zum Maximum der Einhüllenden, das nach der der halben Pulsdauer erreicht wird. Physikalisch entspricht dies der Sättigung des Ionisationsgrades. Im abfallenden Teil des Pulses muß die Ableitung auf Null gesetzt werden.

Zweitens muß die Ionisationsrate so normiert werden, daß ihr Integral über die halbe Pulsdauer gerade den Ionisationsgrad zu E_0, im vorliegenden Fall also eins, ergibt. Dies geschieht durch numerische Integration. Die auf diesem Weg erhaltene Rate zeigt Abbildung 4.21.

Um zu Überprüfen, ob die Ionisationsrate (4.43) den Verlauf in der Simulation wiedergibt, wird ihr Integral mit dem zeitlichen Verlauf des äußeren Ionisationsgrades verglichen, siehe Abbildung 4.22. Die Übereinstimmung kann verbessert werden, wenn man eine geringere Laseramplitude als die Tatsächliche in (4.43) einsetzt. Der Verringerungsfaktor wird graphisch bestimmt und liegt zwischen 0.85 und 0.95. Das Maximum der Rate tritt dann etwas später auf.

Anhand der Driftenergie und der Ionisationsrate kann das Energiespektrum angegeben werden. Es lautet

$$f(E) = \int_0^{t_L/2} \frac{d\alpha}{dt_0}\delta\left(t_0 - t_0(E)\right)\, dt_0. \tag{4.44}$$

Dabei ist $t_0(E)$ die Umkehrfunktion von Gleichung (4.40). Diese ist offenbar weder eindeutig noch analytisch zu bestimmen. Um das Integral numerisch auszurechnen, wird deshalb wie

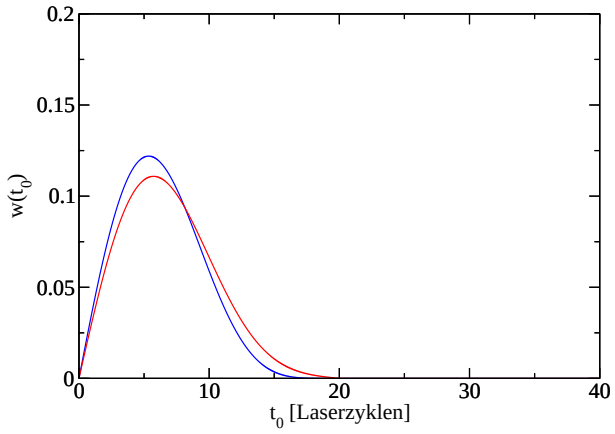


Abbildung 4.21: Ionisationsrate für $E/E_c = 1.04$ (blau) und korrigiert, $E/E_c = 0.85 \cdot 1.04 = 0.88$ (rot). Die blaue Kurve entspricht der tatsächlichen Laseramplitude.

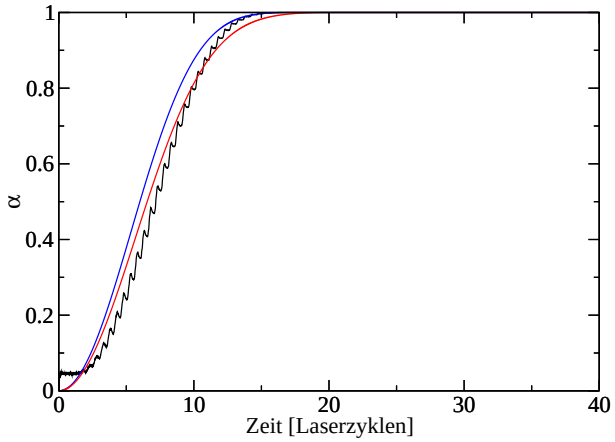


Abbildung 4.22: Verlauf der äußeren Ionisation in der Simulation (schwarz) und Integral der Rate (4.43) mit tatsächlicher (blau) und korrigierter Laseramplitude (rot).

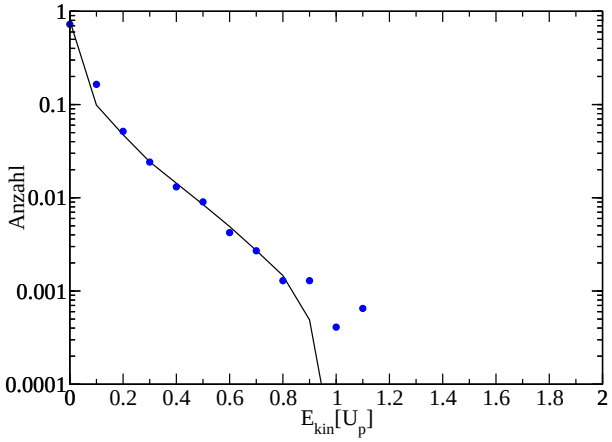


Abbildung 4.23: Verteilung der Elektronenenergie aus Simulation (blaue Punkte) und dem quasistatischen Modell (schwarz) für $E_0/E_c = 1.04$. Der Korrekturfaktor für die Laseramplitude beträgt 0.85.

folgt verfahren. Das Integrationsintervall, eine halbe Pulsdauer, wird in diskrete Zeitschritte zerlegt. Der Bereich der möglichen Energien, $0 < E_{kin} < 2U_p$, wird ebenfalls unterteilt, und jedem Unterbereich wird ein Zähler zugewiesen, sodaß ein Histogramm ensteht. Für jeden Zeitschritt werden Ionisationsrate und Driftenergie berechnet und der der Energie entsprechende Zähler um die Rate erhöht. Abbildungen 4.24 und 4.23 zeigen die auf diese Weise berechneten Verteilungen im Vergleich mit der Simulation für die Laseramplituden $E_0/E_c = 1.04$ und $E_0/E_c = 4/3$.

Die Abbildungen zeigen, daß das quasistatische Modell die Energieverteilung aus der Simulation reproduziert. Dabei muß aber die Laseramplitude in (4.43) um den beschriebenen Faktor korrigiert werden, der graphisch aus dem Ionisationsgrad bestimmt wird. Die Verteilungen besitzen ein Maximum bei kleinen Energien und fallen bis zum Wert $E_{max} \approx 1U_p$ ab. Man findet nur wenige Elektronen mit Energien über dem ponderomotorischen Potential. Das liegt daran, daß die maximale Driftenergie der Elektronen zwar $2U_p$ beträgt, siehe Abbildung 4.20, welche zum Ionisationszeitpunkt $t_0 \approx t_L/2$ gehört; zu diesem Zeitpunkt verschwindet aber die Ionisationrate. Das Maximum der Rate liegt in der Nähe von $t_L/8$, was kleinen Energien entspricht. Mit wachsender Laseramplitude tritt das Maximum der Rate früher auf. Das bedeutet, daß sich das Knie der Verteilung zu kleineren Energien verschiebt. Dieser Effekt ist aber sehr klein. Im Allgemeinen ändert sich das Spektrum bei vollständiger äußerer Ionisation nur wenig mit der Laseramplitude, wenn das ponderomotorische Potential als Einheit benutzt wird. Das liegt daran, daß die Driftenergie, Abbildung 4.20, in dieser Einheit nach Definition nicht von der Laseramplitude

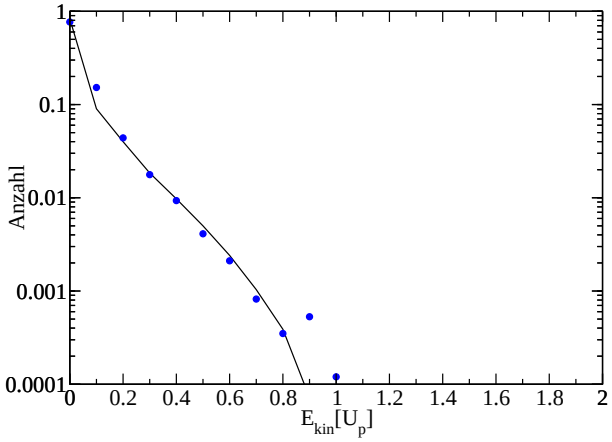


Abbildung 4.24: Verteilung der Elektronenenergie aus Simulation (blaue Punkte) und dem quasistatischen Modell (schwarz) für $E_0/E_c = 4/3$. Der Korrekturfaktor für die Laseramplitude beträgt 0.95.

abhängt.

Abschließend ist festzustellen, daß die Energiespektren aus der Simulation für Laseramplituden $E_0 > E_c$ im Rahmen des vorgestellten quasistatischen Modells verstanden werden können. Bei Laseramplituden $E_0 < E_c$ treten im Vergleich zur Vorhersage des quasistatischen Modells viele Elektronen mit Energien von mehr als $1U_p$ auf.

Kapitel 5

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird die Wechselwirkung großer Edelgascluster mit einem intensiven kurzen Laserpuls untersucht. Die Cluster bestehen aus mehreren tausend Atomen und besitzen Radien im Bereich von $3-4$ nm. Der Laserpuls hat eine Intensität von $10^{15}-10^{18}\mathrm{W/cm}^2$ und eine Pulsdauer von 10-100 fs.

Der Ausgangspunkt ist die Beschreibung des Clusters als klassisches, elektrostatisch wechselwirkendes Plasma. Es wird angenommen, daß sich in den ersten Laserperioden ein zeitlich konstanter Ionisationszustand der Atome einstellt; die Ladungsdichten von Elektronen und Ionen werden im Rahmen der Vlasov-Maxwell-Theorie als stoßfreies ideales Plasma in Wechselwirkung mit dem Laserfeld beschrieben.

Simulation

Die Dynamik des Clusters wird durch eine dreidimensionale Teilchensimulation dargestellt. Elektronen- und Ionendichte werden wie im Particle-In-Cell-Verfahren durch Simulationsteilchen repräsentiert. Die elektrostatische Wechselwirkung dieser Teilchen wird mithilfe des Tree-Code-Verfahrens berechnet, das eine systematische Multipolentwicklung bis zur Quadrupolordnung darstellt.

In Kombination mit dem Leap-Frog-Algorithmus zur Integration der Bewegungsgleichungen erweist sich das Tree-Code-Verfahren als ausreichend genau, um die Energieerhaltung des Systems über die Dauer eines Laserpulses zu gewährleisten. Die Berechnung des durch die äußeren Elektronen erzeugten Polarisationsfeldes im Cluster zeigt, daß auch kleine Feldkorrekturen erfaßt werden.

Plasmadynamik

Zunächst wird die freie Dynamik des Clusters ohne anregendes Laserfeld untersucht. Anfänglich gegen die Ionenkugel verschoben, führen die Elektronen die als Mie-Oszillation bekannte Dipolschwingung aus. Diese wird durch Diffusion der Elektronengeschwindigkeiten gedämpft, sodaß die kinetische Energie in Wärmeenergie umgewandelt wird.

Ein weiterer Untersuchungsgegenstand ist die zeitliche Entwicklung des Plasmas aus einem thermischen Anfangszustand. Die Elektronen erhalten Gauß-verteilte Anfangsgeschwindigkeiten. Die schnellen Elektronen verlassen den Cluster aufgrund ihrer kinetischen Energie. Sie bilden eine expandierende Wolke, innerhalb derer das vom geladenen Clusterrumpf erzeugte Potential abgeschirmt wird. Anfangstemperatur, Expansionsgeschwindigkeit und Endtemperatur der Elektronenwolke hängen in Form eines näherungsweisen Erhaltungssatzes zusammen. Die Verteilungsfunktion der Elektronenenergie zeigt zwei deutlich getrennte Populationen, die gebundenen und freien Elektronen entsprechen.

Die Expansion der Ionen verläuft bei kleinem Ionisationsgrad langsam. Es wird Energie von den gefangenen Elektronen an die Ionen übertragen; die der elektrostatischen Spannungsenergie entsprechende kinetische Energie wird nur bei hohem Ionisationsgrad erreicht. Das Energiespektrum der Coulomb-Explosion wird analytisch angegeben und stimmt bis auf einen Oberflächeneffekt mit den Simulationsergebnissen überein; dieser Oberflächeneffekt wird systematisch untersucht und kann auf räumliche Inhomogenitäten der Ionendichte zurückgeführt werden.

Durch die Ionenausdehnung sinkt die Resonanzfrequenz des Clusterpotentials. Dabei kann die kollektive Elektronenschwingung durch ein niederfrequentes externes Laserfeld resonant angeregt werden. Anhand der relativen Phase zwischen Laserfeld und Geschwindigkeit des Elektronenschwerpunkts kann dieser Effekt beobachtet werden: Sie besitzt einen Sprung zu dem Zeitpunkt, zu dem die kritische Dichte durchlaufen wird.

Laserabsorption

Die Energieabsorption in einem Laserfeld wird im Zusammenhang mit der äußeren Ionisation diskutiert. Ausgehend von exakten Gleichgewichten des Clustermodells bei angelegtem elektrischem Feld kann der äußere Ionisationsgrad analytisch als Funktion der Laseramplitude angegeben werden, wenn die Ionen sich nicht bewegen. Der Einfluß der Ionenbewegung besteht in der Absenkung der zur vollständigen Ionisation des Clusters benötigten Laseramplitude, was in der analytischen Form des Ionisationsgrades durch Korrektur des

eingehenden Clusterradius berücksichtigt werden kann. Es gibt kein Anzeichen für einen wesentlichen Einfluß der Mie-Resonanz auf die äußere Ionisation.

Die durch die positive Aufladung des Clusters bei der Laserwechselwirkung absorbierte potentielle Energie der Ionen treibt deren Expansion an. Wie bei der Behandlung ohne Laserfeld findet man einen linearen Zusammenhang zwischen Ionisationsgrad und maximaler kinetischer Energie der Ionen; bei Eröhung der Laseramplitude über die Ionisationsschwelle steigt die maximale Ionenenergie nur schwach, in qualitativer Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen.

Die Energieverteilungen der Elektronen unterscheiden sich deutlich vom Fall der radialsymmetrischen Expansion ohne Laserfeld. Eine klare Aufteilung in zwei Populationen wird nicht gefunden, und auch von der Ionenexpansion hängt die Energieverteilung nur schwach ab. Ein Charakeristikum ist ein Plateau, das bei Laseramplituden unterhalb der Ionisationsschwelle auftritt und zwischen zwei und drei ponderomotorischen Energieeinheiten abbricht. In einem kleinen Intensitätsbereich können diese Spektren durch zwei Exponentialfunktionen dargestellt werden, in qualitativem Einklang mit experimentellen Ergebnissen. Bei Amplituden oberhalb der Ionisationsschwelle reproduziert ein quasistatisches Modell aus der Atomphysik die aus der Teilchensimulation gewonnenen Spektren.

Anhang A

Dimensionslose Bewegungsgleichungen

Die Bewegungsgleichungen (2.12) werden mithilfe der Plasmafrequenz ω_p und des Clusterradius R_c dimensionslos umgeschrieben. Die Plasmafrequenz ist über die Elektronendichte des neutralen Clusters und diese wiederum über die Gesamtladung $Q_c = ZeN_a$ der Ionen definiert:

$$\omega_p^2 = \frac{4\pi e^2 n_e}{m_e} \quad \text{mit} \quad n_e = \frac{3ZN_a}{4\pi R_c^3} \; . \tag{A.1}$$

Die Ladungen und Massen der J Simulationselektronen und -Ionen sind gegeben durch

$$\begin{array}{ll} Q_e = -\frac{Q_c}{J} & M_e = \frac{m_e N_e}{J} \\ Q_i = \frac{Q_c}{J} & M_i = \frac{m_i N_a}{J} \end{array} \; . \tag{A.2}$$

Dabei ist $N_e = ZN_a$ die Gesamtzahl der Elektronen im Cluster. In den dimensionslosen Orten $\boldsymbol{R}_k = \boldsymbol{r}_k / R_c$, Vierergeschwindigkeiten $\boldsymbol{U}_k = \boldsymbol{u}_k / (\omega_p R_c)$ und der Zeit $T = \omega_p t$ lauten die Bewegungsgleichungen dann

$$\frac{d\boldsymbol{U}_k}{dT} = \operatorname{sgn}(Q_k) \left(\boldsymbol{E}(\boldsymbol{R}_k) + \boldsymbol{E}_L(\boldsymbol{R}_k, T) + \frac{\boldsymbol{U}_k}{C\gamma_k} \times \boldsymbol{B}_L(\boldsymbol{R}, t) \right), \tag{A.3}$$

$$\frac{d\boldsymbol{R}_k}{dT} = \frac{\boldsymbol{R}_k}{\gamma_k}, \tag{A.4}$$

$$\gamma_k = \sqrt{1 + \frac{U_k^2}{C^2}}. \tag{A.5}$$

Die konstante C ist die dimensionslose Lichtgeschwindigkeit, $C = c/(\omega_p R_c)$. Das dimensionslose Wechselwirkungsfeld lautet

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{R}_k) = \frac{1}{3J} \sum_{j \neq k} \frac{\operatorname{sgn}(Q_j)(\boldsymbol{R}_k - \boldsymbol{R_j})}{\sqrt{(\boldsymbol{R}_k - \boldsymbol{R}_j)^2 + \epsilon^2}^3}, \tag{A.6}$$

und das Laserfeld

$$\boldsymbol{E}_L = \frac{R_c^2}{3Q_c}\hat{\boldsymbol{E}}_L, \tag{A.7}$$

wobei $\hat{\boldsymbol{E}}_L$ das Laserfeld in Gauß-Einheiten ist. Das Magnetfeld besitzt die gleiche Einheit. Die kinetische Energie eines Elektrons ist

$$E_{kin,k} = 3\,\frac{M_s}{m_e}\,\boldsymbol{U}_k^2\,(\gamma_k - 1)\,E_{ele}^{max}, \tag{A.8}$$

mit der Elektronenenergie E_{ele}^{max} aus Gleichung (2.5). Faktoren von drei wie bei den Temperaturen in Gleichung (3.38) entstammen der dimensionslosen Mie-Frequenz,

$$\omega_m^2 = \frac{\omega_p^2}{3}. \tag{A.9}$$

Anhang B

Zur homogenen Ladungsdichte

Hier werden die Potentiale und die Spannungsenergien der in Abbildung B.1 gezeigten Konfigurationen angegeben. Das Potential und das elektrische Feld der homogenen Ionenverteilung mit Radius R_c und Ladung Q_c lautet

$$\phi(r) = \frac{Q_c}{R_c} \begin{cases} \frac{3R_c^2 - r^2}{R_c^2} & r < R_c \\ \frac{R_c}{r} & r \geq R_c \end{cases} \quad \text{und} \quad E_r(r) = \frac{Q_c}{R_c^2} \begin{cases} \frac{r}{R_c^3} & r < R_c \\ \frac{R_c^2}{r^2} & r \geq R_c \end{cases} \tag{B.1}$$

Die Energie erhält man durch Integration der Energiedichte:

$$W = \frac{1}{8\pi} \int dV \; E_r^2 = \frac{1}{2} \left(\int_0^{R_c} dr (rE_r)^2 \; + \; \int_{R_c}^{\infty} dr (rE_r)^2 \right). \tag{B.2}$$

Mit dem elektrischen Feld (B.1) lautet das Ergebnis

$$W = \frac{1}{2} \frac{Q_c^2}{R_c} \left(\frac{1}{5} + 1 \right) = \frac{3Q_c^2}{5R_c}. \tag{B.3}$$

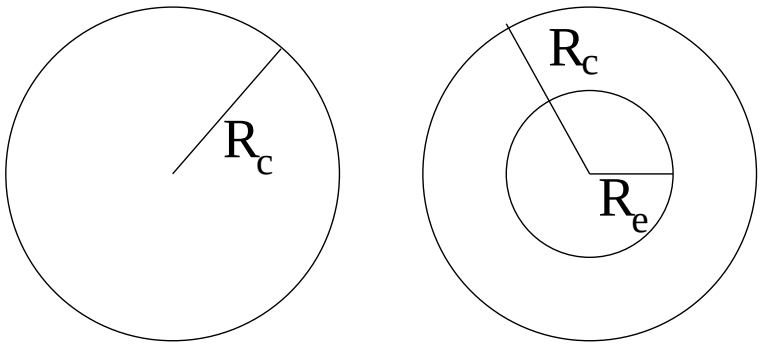


Abbildung B.1: Homogene Ionendichte (links) und Gleichgewichtsdichte ohne externes Feld (rechts). Das Zentrum ist feldfrei.

Wenn das Zentrum der Ionenkugel durch eine homogene Elektronendichte mit Radius R_e kompensiert wird, lautet das Feld

$$E_r(r) = \frac{Q_c}{R_c^2} \begin{cases} 0 & r < R_e \\ -\frac{R_e^3}{R_c^3}\frac{R_c^2}{r^2} + \frac{r}{R_c} & R_e \le r < R_c \\ \left(1 - \frac{R_e^3}{R_c^3}\right)\frac{R_c^2}{r^2} & R_c \le r \end{cases} \tag{B.4}$$

Als elektrostatische Energie ergibt sich

$$\begin{aligned} W &= \frac{1}{2}\left(\int_0^{R_e} dr\,(rE_r)^2 + \int_{R_e}^{R_c} dr\,(rE_r)^2 + \int_{R_c}^{\infty} dr\,(rE_r)^2\right) \\ &= \frac{1}{2}\frac{Q_c^2}{R_c}\left(0 + \frac{1}{5} + \frac{9}{5}\frac{R_e^5}{R_c^5} - \frac{R_e^6}{R_c^6} - \frac{R_e^3}{R_c^3} + 1 + \frac{R_e^6}{R_c^6} - 2\frac{R_e^3}{R_c^3}\right) \\ &= \frac{3Q_c^2}{5R_c}\,\frac{1}{2}\left(2 + 3\left(\frac{R_e}{R_c}\right)^5 - 5\left(\frac{R_e}{R_c}\right)^3\right)\,. \end{aligned} \tag{B.5}$$

Anhang C

Multipolentwicklung

Die Multipolentwicklung des Soft-Core-Potentials

$$\phi(\boldsymbol{r}) = \sum_k \frac{Q_k}{\sqrt{(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{x}_k) + \epsilon^2}}, \tag{C.1}$$

wobei die Summe über die Quellen Q_k des Feldes an den Orten $\boldsymbol{x}_k$ läuft, lautet bis zum Quadrupolterm

$$\phi(\boldsymbol{r}) = \frac{q}{\sqrt{r^2 + \epsilon^2}} + \frac{\boldsymbol{p} \cdot \boldsymbol{r}}{\sqrt{r^2 + \epsilon^2}^3} + \frac{1}{2}\left(3\frac{\boldsymbol{r} \cdot Q\boldsymbol{r}}{\sqrt{r^2 + \epsilon^2}^5} - \frac{\operatorname{tr} Q}{\sqrt{r^2 + \epsilon^2}^3}\right). \tag{C.2}$$

Dabei wurden die Multipolmomente definiert als

$$q = \sum_k Q_k \tag{C.3}$$

$$\boldsymbol{p} = \sum_k Q_k \boldsymbol{x}_k \tag{C.4}$$

$$Q = \sum_k Q_k \boldsymbol{x}_k \otimes \boldsymbol{x}_k. \tag{C.5}$$

Der Ausdruck tr$Q$ bezeichnet die Spur des Quadrupoltensors und $\otimes$ das Tensorprodukt. Man beachte, daß dieser hier nicht in der aus der Elektrostatik bekannten spurfreien Form (siehe [47]) verwendet wird, sondern einfach durch das Tensorprodukt der Teilchenkoordinate, multipliziert mit der Ladung, gegeben ist.

C.1 Translationsformeln

Bei der Durchführung des Tree-Code-Algorithmus müssen die Multipolmomente einer Tochterzelle mit Zentrum $\boldsymbol{x}_1$ zum Zentrum $\boldsymbol{x}_2$ der diese enthaltenden Überzelle verschoben

werden. Die dazu notwendigen Translationsformeln lauten, wobei der Index 1 das Moment bezüglich $\boldsymbol{x}_1$ und der Index 2 dasjenige bezüglich $\boldsymbol{x}_2$ bezeichnen,

$$q_2 = q_1 \tag{C.6}$$

$$\boldsymbol{p}_2 = \boldsymbol{p}_1 + q_1 (\boldsymbol{x}_1 - \boldsymbol{x}_2) \tag{C.7}$$

$$\begin{aligned} Q_2 = {} & Q_1 + \boldsymbol{p}_1 \otimes (\boldsymbol{x}_1 - \boldsymbol{x}_2) + (\boldsymbol{x}_1 - \boldsymbol{x}_2) \otimes \boldsymbol{p}_1 \\ & + q_1 (\boldsymbol{x}_1 - \boldsymbol{x}_2) \otimes (\boldsymbol{x}_1 - \boldsymbol{x}_2) . \end{aligned} \tag{C.8}$$

Literaturverzeichnis

[1] D. Strickland and G. Mourou, Opt. Commun. **56**, 219 (1985).

[2] O. F. Hagena, Z. Phys. D **4**, 291 (1987).

[3] M. Perner, S. Gresillon, J. März, G. von Plessen, J. Feldmann, J. Porstendorfer, K.-J. Berg, and G. Berg, Phys. Rev. Lett. **85**(4), 792 (2000).

[4] A. Bartelt, J. D. Close, F. Federmann, N. Quaas, and J. P. Toennies, Phys. Rev. Lett. **77**(17), 3525 (1996).

[5] P.-G. Reinhard and E. Suraud, Eur. Phys. J. D **3**, 175 (1998).

[6] L. Köller, M. Schumacher, J. Köhn, S. Teuber, J. Tiggesbäumker, and K. H. Meiwes-Broer, Phys. Rev. Lett. **82**, 3783 (1999).

[7] T. Doppner, Th. Fennel, Th. Diederich, J. Tiggesbaumker, and K. H. Meiwes-Broer, Physical Review Letters **94**, 013401 (2005).

[8] E. Springate, S. A. Aseyev, S. Zamith, and M. J. J. Vrakking, Phys. Rev. A **68**, 053201 (2003).

[9] L. M. Chen, J. J. Park, K. H. Hong, J. L. Kim, J. Zhang, and C. H. Ham, Phys. Plasmas **9**, 3595 (2002).

[10] Y. L. Shao, T. Ditmire, J. W. G. Tisch, E. Springate, J. P. Marangos, and M. H. R. Hutchinson, Phys. Rev. Lett. **77**, 3343 (1996).

[11] T. Ditmire, E. Springate, J. W. G. Tisch, Y. L. Shao, M. B. Mason, N. Hay, J. P. Marangos, and M. H. R. Hutchinson, Phys. Rev. A **57**, 369 (1998).

[12] V. Kumarappan, M. Krishnamurthy, and D. Mathur, Phys. Rev. A **66**, 033203 (2002).

[13] V. Kumarappan, M. Krishnamurthy, and D. Mathur, Phys. Rev. A **67**, 043204 (2003).

[14] A. McPherson, B. D. Thompson, A.B. Borisov, K. Boyer, and C. Rhodes, Nature(London) **370**, 631 (1994).

[15] T. Mocek, C. M. Kim, H. J. Shin, D. G. Lee, Y. H. Cha, K. H. Hong, and C. H. Nam, Phys. Rev. E **62**, 4461 (2000).

[16] E. Parra, I. Alexeev, J. Fan, K. Y. Kim, S. J. McNaught, and H. M. Milchberg, Phys. Rev. E **62**, R5931 (2000).

[17] R. C. Issac, G. Vieux, B. Ersfeld, E. Brunetti, S. P. Jamison, J. Gallacher, D. Clark, and D. A. Jaroszynski, Phys. Plasmas **11**, 3491 (2004).

[18] J. W. G. Tisch, N. Hay, E. Springate, E. T. Gumbrell, M. H. R. Hutchinson, and J. P. Marangos, Phys. Rev. A **60**, 3076 (1999).

[19] E. Springate, N. Hay, J. W. G. Tisch, M. B. Mason, T. Ditmire, M. H. R. Hutchinson, and J. P. Marangos, Phys. Rev. A **61**, 063201 (2000).

[20] Y. Kishimoto, T. Masaki, and T. Tajima, Phys. Plasmas *9*(2), 589 (2002).

[21] J. Zweiback, R. A. Smith, T. E. Cowan, G. Hays, K. B. Wharton, V. P. Yanovsky, and T. Ditmire, Phys. Rev. Lett. *84*(12), 2634 (2000).

[22] T. Ditmire, T. Donnelly, A. M. Rubenchik, R. W. Falcone, and M. D. Perry, Phys. Rev. A **53**, 3379 (1996).

[23] J. Zweiback, T. Ditmire, and M. D. Perry, Phys. Rev. A **59**, R3166 (1999).

[24] B. Breizman, A. V. Arefiev, and M. V. Fomyts'kyi, Phys. Plasmas **12**, 056706 (2005).

[25] F. Greschik and H.-J. Kull, Laser and Particle Beams **22**, 137 (2004).

[26] T. Döppner, Th. Fennel, J. Tiggesbäumker, and K. H. Meiwes-Broer, Phys. Rev. A **73**, 031202(R) (2006).

[27] C. Rose-Petruck, K. J. Schafer, K. R. Wilson, and C. P. J. Barty, Phys. Rev. A **55**, 1182 (1997).

[28] Ulf Saalmann and Jan-Michael Rost, Physical Review Letters **91**, 223401 (2003).

[29] Isidore Last and Joshua Jortner, Phys. Rev. A **73**, 013202 (2006).

[30] P. Mulser, M. Kanapathipillai, and D. H. H. Hoffmann, Phys. Rev. Lett. *95*, 103401 (2005).

[31] M. Kundu and D. Bauer, Phys. Rev. Lett **96**, 123401 (2006).

[32] S. Pfalzner and P. Gibbon, *Many-Body Tree Methods In Physics*, Cambridge University Press, 1996.

[33] J. Barnes and P. Hut, Nature **324**, 446 (1996).

[34] Susanne Pfalzner and Paul Gibbon, Phys. Rev. E **57**(4), 4698 (1998).

[35] F. Greschik, *Dissertation*, RWTH Aachen, 2003.

[36] C. K. Birdsall and A. B. Langdon, *Plasma Physics Via Computer Simulations*, IOP Publishing, Bristol and Philadelphia, 1991.

[37] A. A. Vlasov, J. Exptl. Theor. Phys. USSR **8**, 291 (1938).

[38] L. D. Landau and E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der theoretischen Physik, Bd. X*, Akademie-Verlag, Berlin, 1983.

[39] T. Fennel, G. F. Bertsch, and K.-H. Meiwes-Broer, Eur. Phys. J. D **29**, 367 (2004).

[40] H. M. Milchberg, S. J. McNaught, and E. Parra, Phys. Rev. E **64**, 056402 (2001).

[41] F. Brunel, Phys. Rev. Lett. **59**, 52 (1987).

[42] F. Greschik, L. J. Arndt, and H.-J. Kull, Europhys. Lett. **72**, 376 (2005).

[43] V. P. Krainov and M. B. Smirnov, Phys. Reports **370**, 237 (2002).

[44] M. B. Smirnov and V. P. Krainov, Phys. Plasmas **10**, 443 (2003).

[45] J. Kostyukov and J.-M. Rax, Phys. Rev. E **67**, 066405 (2003).

[46] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett **71**, 1994 (1993).

[47] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics (3rd. ed.)*, Wiley, New York, 1999.

[48] T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett. **61**, 2304 (1988).

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name	Ludwig Johannes Arndt
Anschrift	Oppenhoffallee 109, 52066 Aachen
Geburtsdatum, -ort	24.03.1978, Köln

Ausbildung

06/1997	Abitur am Pascal-Gymnasium Grevenbroich
10/1997 - 07/2003	Studium der Physik an der RWTH Aachen; Vordiplom 08/1999; Abschluß als Diplom-Physiker
09/2003 - 12/2006	Promotion an der RWTH Aachen; Betreuer: Prof. Dr. H.-J. Kull

Danksagung

Ich bedanke mich besonders bei Prof. Dr. Hans-Jörg Kull für die gute Betreuung und Begleitung während meiner Promotion.

Desweiteren bedanke ich mich bei den Mitarbeitern der Lehrstühle für theoretische Physik der RWTH Aachen und des Fraunhofer-Instituts für Lasertechnik für die gute Arbeitsatmosphäre.

Bei meiner Familie, insbesondere meiner Freundin Nina, bedanke ich mich für alle Unterstützung nichtphysikalischer Art.