

Hochschule Coburg
Studiengang Simulation und Test
Fakultät Angewandte Naturwissenschaften

Ultrafast Hybrid Nanoplasmonics

Optische Kontrolle ultraschneller Ladungsprozesse von der Theorie zur Applikation

Masterarbeit
zur Erlangung des akademischen Grades eines
Master of Engineering (M. Eng.)

Vorgelegt von: Jakob Elsner
Matrikelnummer: 00748017

Gutachter: Prof. Dr. Thorsten Uphues
Abgabedatum: 30.09.2022

Danksagung

Mein Dank gilt zunächst Herrn Prof. Dr. Thorsten Uphues für die Bereitstellung der Masterarbeit, einer interessanten Fragestellung und die hilfreichen Denkanstöße, die mir bei meiner Arbeit weiterhalfen.

Ferner möchte ich dem gesamten Personal des Instituts für Sensor- und Aktortechnik (ISAT) für die angenehme Arbeitsatmosphäre, tatkräftige Unterstützung und Hilfestellung bei fachlichen Fragen danken.

Besonders möchte ich mich bei meinem Kollegen Klaus Lutter und meiner Schwester Jule Elsner für das Korrekturlesen bedanken.

Abschließend möchte ich mich bei meinen Eltern und meiner Freundin bedanken, die mich in allen Lebenslagen unterstützt haben und stets ein offenes Ohr für mich hatten.

Kurzfassung

Attosekunden-Streakingspektroskopie ermöglicht die Untersuchung extrem schneller Prozesse in Atomen und Festkörpern mit einer zeitlichen Auflösung im Attosekundenbereich. In dieser Arbeit wird eine Simulationsumgebung geschaffen, in welcher derartige Spektroskopieexperimente zur Untersuchung von plasmonischen Feldern simuliert werden können. Experimentell werden dabei mithilfe eines Laserpulses im extrem ultravioletten Bereich (XUV) Photoelektronen in der zu untersuchenden Nanogeometrie angeregt und anschließend emittiert. Diese werden daraufhin vom plasmonischen Feld beschleunigt, welches mithilfe eines zweiten Infrarotlaserpulses (IR) angeregt wurde. Durch das resultierende Photoelektronenspektrum können schließlich Rückschlüsse auf das zu Grunde liegende plasmonische Feld geschlossen werden.

Nach den theoretischen Grundlagen der Plasmonik und der Erzeugung ultrakurzer Laserpulse mittels hoher Harmonischer folgt die Beschreibung der Simulationsumgebung. Der physikalische Prozess wird hierfür in drei aufeinanderfolgende Abschnitte unterteilt. Zunächst folgt die Berechnung der plasmonischen Felder mithilfe des Python-Packages Meep. Die Maxwell-Gleichungen werden dabei mittels Finite Difference Time Domain (FDTD) Verfahren numerisch gelöst. Anschließend wird der Photoemissionsprozess der durch den XUV-Puls angeregten Elektronen simuliert, welcher maßgeblich von elastischen und inelastischen Stoßprozessen bestimmt wird. Hierbei wird sowohl auf die physikalischen Modelle sowie deren programmiertechnische Umsetzung eingegangen. Abschließend folgt die Lösung der Bewegungsgleichung der Photoelektronen im elektromagnetischen Feld aus Schritt eins. Für das Nahfeld geschieht dies numerisch mithilfe des Runge-Kutta-Nyström-Verfahrens, für das Fernfeld dagegen analytisch durch Lösung der zugrundeliegenden Differentialgleichung.

Abschließend wird die Simulationsumgebung anhand der Streaking-Spektren einer Nanokugel aus Gold validiert und drei weitere Geometrien untersucht: eine Bowtie-Nanoantenne und zwei Diskresonatoren. Dabei können gewisse Anteile des plasmonischen Feldes direkt aus den Streaking-Spektren abgelesen werden und auch Eigenschaften des IR-Laserpulses, wie die Träger-Einhüllenden-Phase (CEP), mit wenigen Grad Abweichung bestimmt werden. Auch eine ortsaufgelöste Information über das plasmonische Nahfeld ist in den Impulsdaten der Photoelektronen enthalten.

Abstract

Attosecond streaking spectroscopy enables the investigation of extremely fast processes in atoms and solids with a temporal resolution in the attosecond range. In this work, a simulation environment is created in which such spectroscopy experiments for the investigation of plasmonic fields can be simulated. Experimentally, a laser pulse in the extreme ultraviolet regime (XUV) is used to excite photoelectrons, which are consequently emitted from the solid and accelerated by the plasmonic field. The latter was excited by a second infrared (IR) laser pulse. The resulting photoelectron spectrum can be used to draw conclusions about the underlying plasmonic field.

After the theoretical basics of plasmonics and the generation of ultrashort laser pulses using high harmonics are introduced, a description of the simulation environment is provided. For this purpose, the process is divided into three consecutive sections. First, the plasmonic fields are calculated using the Python package Meep. Maxwell's equations are solved numerically using the Finite Difference Time Domain (FDTD) method. Subsequently, the photoemission process of the electrons is simulated, which is largely determined by elastic and inelastic collision processes within the solid. Here, both the theoretical models and their programming implementation are addressed. Finally, the equation of motion of the photoelectrons in the electromagnetic field is solved. For the electromagnetic near field, this is done numerically by means of the Runge-Kutta-Nyström method. The solution in the far field was determined analytically by solving the underlying differential equation.

Finally, the simulation environment is validated using the streaking spectra of a gold nanosphere. Furthermore, three other geometries were investigated: a bow-tie nanoantenna and two disc resonators. Thereby, certain parts of the plasmonic field can be read directly from the streaking spectra. In addition, properties of the IR laser pulse, such as the carrier envelope phase (CEP), can also be determined with an error of a few degrees. Spatially resolved information about the plasmonic near field is contained in the pulse data of the photoelectrons as well.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	VI
Tabellenverzeichnis	X
Programmcodeverzeichnis	XI
Abkürzungsverzeichnis	XII
1 Einleitung	1
2 Theoretische Grundlagen	3
2.1 Plasmonik	3
2.1.1 Modellierung der dielektrischen Funktion mithilfe des Drude-Lorentz-Modells	3
2.1.2 Oberflächenplasmon-Polaritonen (SPPs)	7
2.1.3 Oberflächenplasmonen (LSPs)	9
2.2 Erzeugung ultrakurzer XUV-Laserpulse	10
2.2.1 Erzeugung hoher Harmonischer	11
2.2.2 Erzeugung eines isolierten Attosekundenpulses mittels Amplituden-Gating	14
3 Erstellung der Simulationsumgebung	17
3.1 Simulation der plasmonischen Felder mithilfe von Meep	18
3.1.1 Einheiten in Meep	20
3.1.2 Quellen elektromagnetischer Wellen	20
3.1.3 Randbedingungen und PMLs	21
3.1.4 Modellierung der dielektrischen Funktion in Meep	22
3.1.5 Erzeugung einer räumlich veränderlichen Ortsauflösung . .	24

3.1.6	Aufbau der Simulationen	28
3.1.7	Verifikation der Simulationsumgebung	29
3.2	Modellierung der Photoemission	34
3.2.1	Anregung der Elektronen	35
3.2.2	Elektronentransport an die Oberfläche	39
3.2.2.1	Elastische Streuprozesse	41
3.2.2.2	Inelastische Streuprozesse	42
3.2.3	Emission der Photoelektronen	45
3.2.4	Programmiertechnische Umsetzung des Photoemissions- prozesses	47
3.3	Lösung der Bewegungsgleichung der Photoelektronen	54
3.3.1	Numerische Lösung im Nahfeld	55
3.3.2	Analytische Lösung im Fernfeld	56
3.3.2.1	Homogene Lösung der Differentialgleichung	58
3.3.2.2	Inhomogene Lösung der Differentialgleichung	60
3.3.2.3	Numerische Berechnung der Integralfunktionen	62
3.4	Programmiertechnische Umsetzung der Simulationsumgebung	65
4	Ergebnisse	71
4.1	Nanokugel aus Gold	72
4.2	Bowtie-Nanoantenne	78
4.3	Diskresonator mit SiO ₂ als Isolator	82
4.4	Diskresonator mit h-BN als Isolator	90
5	Zusammenfassung und Ausblick	95
	Literatur	97
A	4D-Interpolationsalgorithmus	105
	Erklärung der Urheberschaft	109

Abbildungsverzeichnis

2.1	Schematische Darstellung der Ausbreitung eines SPPs an einer metallisch-dielektrischen Grenzfläche.	8
2.2	Veranschaulichung der Anregung eines LSPs in einer Metallkugel.	9
2.3	Schematische Darstellung des Dreistufenmodells und des HHG-Spektrums.	12
2.4	Darstellung verschiedener Flugbahnen eines Elektrons im HHG-Prozess.	13
2.5	Mögliche Spiegelkonfiguration zur Steuerung des Zeitversatzes zwischen IR-Puls und XUV-Puls.	14
2.6	Einfluss der CEP des treibenden Laserpulses auf die Erzeugung eines einzelnen XUV-Pulses.	16
3.1	Darstellung des in den FDTD-Simulationen verwendeten Yee-Gitters.	19
3.2	Vergleich der mittels des Drude-Lorentz-Modells approximierten dielektrischen Funktion mit den Literaturdaten.	25
3.3	Schematische Darstellung der Simulationsumgebung.	28
3.4	Illustration des zur Verifikation der Simulationsumgebung genutzten Setups.	29
3.5	Vergleich der Absorptionsspektren in Abhängigkeit der Dicke der oberen Golddisk den von Hengster et al. [32] durchgeführten Simulationen mit den Meep-Simulationen.	31
3.6	Vergleich der Absorptionsspektren in Abhängigkeit des Radius der unteren Golddisk den von Hengster et al. [32] durchgeführten Simulationen mit den Meep-Simulationen.	32
3.7	Vergleich der zeitlichen Entwicklung des plasmonischen Nahfelds bei den von Hengster et al. [32] durchgeführten Simulationen mit den Meep-Simulationen.	33
3.8	Schematische Darstellung der drei Schritte des Photoemissionsprozesses.	35

3.9	Graphische Darstellung des differentiellen Wirkungsquerschnitts und EMFP für Gold.	42
3.10	Graphische Darstellung des DIIMFP und EMFP für Gold.	43
3.11	Approximation der Energieverlustfunktion mittels einer Summe mehrerer Drude-Funktionen und deren Vergleich mit Literaturdaten.	45
3.12	Vergleich der klassischen mit der quantenmechanischen Transmissionsfunktion.	47
3.13	Blockdiagramm der programmiertechnischen Umsetzung des Photoemissionsprozesses	48
3.14	Exemplarisches Photoemissionsspektrum der Simulationsumgebung.	54
3.15	Blockdiagramm der programmiertechnischen Umsetzung des Hauptteils der Simulationsumgebung.	66
3.16	Graphische Darstellung der finalen Elektronenposition und der finalen kinetischen Energie in Abhängigkeit des Zeitschritts des Runge-Kutta-Nyström-Verfahrens.	70
3.17	Graphische Darstellung der finalen Elektronenposition und der finalen kinetischen Energie in Abhängigkeit der für die Simulation verwendeten Elektronenanzahl.	70
4.1	Schematische Darstellung der Simulationsumgebung der beiden simulierten Nanokugeln aus Gold.	73
4.2	Graphische Darstellung der elektrischen Feldstärke der Goldkugel.	73
4.3	Verstärkungsfaktor des plasmonischen Feldes an den Polen einer Goldnanokugeln in Abhängigkeit der zentralen Wellenlänge des IR-Pulses.	73
4.4	Streaking-Spektren der beiden Goldkugel aus den Simulationen von Saydanzad et al. [41].	74
4.5	Streaking-Spektren der beiden Goldkugel für verschiedene Detektorpositionen.	75
4.6	Streaking-Spektren der beiden Goldkugeln ohne plasmonisches Feld.	77
4.7	Streaking-Spektrum der $r = 5 \text{ nm}$ Goldkugel mit Sekundärelektronen.	77

4.8	Schematische Darstellung der Simulationsumgebung der Bowtie-Nanoantenne mitsamt dessen Abmessungen.	78
4.9	Graphische Darstellung der elektrischen Feldstärke der Bowtie-Nanoantenne.	79
4.10	Streaking-Spektren der Bowtie-Nanoantenne mit und ohne Sekundärelektronen.	80
4.11	Beiträge des Streaking-Spektrums und Streaking-Spektren der Photoelektronen aus mittleren Spitzen der Bowtie-Nanoantenne. .	81
4.12	Approximation der Emissionsposition mit zugehöriger finalen Elektronenenergie.	81
4.13	Schematische Darstellung der Simulationsumgebung des Diskresonators mitsamt dessen Abmessungen.	83
4.14	Graphische Darstellung des Betrags der elektrischen Feldstärke des Diskresonators zum Zeitpunkt $\tau = 6.7 \text{ fs}$	83
4.15	Graphische Darstellung der x-Komponente der elektrischen Feldstärke des einfallenden IR-Pulses und des plasmonischen Feldes in Abhängigkeit der Zeit und des Materials der oberen Disk.	84
4.16	Streaking-Spektren ohne Sekundärelektronen der Diskresonatoren für die drei verschiedenen Materialien der oberen Disk.	85
4.17	Gemittelte finale Elektronenenergie in Abhängigkeit der x-y-Projektion der approximierten Emissionsposition und das entsprechende plasmonische Nahfeld der oberen Disk.	86
4.18	Streaking-Spektren der Photoelektronen mit einem Akzeptanzwinkel des TOF von $\alpha_x = \pi/16$ und zugehörigem plasmonischem Feld direkt neben der Mantelfläche der oberen Disk in der x-z-Ebene.	88
4.19	Streaking-Spektren des Diskresonators für verschiedene CEP-Werte des IR-Laserpulses.	89
4.20	Schematische Darstellung der Simulationsumgebung des Diskresonators mitsamt dessen Abmessungen.	90
4.21	Plasmonisches Nahfeld der oberen Disk in Abhängigkeit des Zeitversatzes.	91

4.22	Streaking-Spektren des Diskresonators mit und ohne Sekundärelektronen.	92
4.23	Streaking-Spektrum für einen Akzeptanzwinkel des TOF-Detektors von $\alpha_z = \pi/8$ und Vergleich der Varianz dieses Spektrums mit verschiedenen Transformationen des plasmonischen Nahfelds der oberen Platte.	93
A.1	Geschwindigkeit des 4D-Interpolationsalgorithmus in Abhängigkeit der Anzahl an zu interpolierenden Punkten.	107

Tabellenverzeichnis

2.1	Plasmafrequenz verschiedener Metalle.	5
3.1	Einheitenbasis in Meep.	20
3.2	Startwerte für den Fit-Algorithmus der dielektrischen Funktion mittels des Drude-Lorentz-Modells.	23
3.3	Vergleich der Resonanzwellenlängen aus den von Hengster et al. [32] durchgeführten Simulationen mit denjenigen der Meep- Simulationen.	30
3.4	Butcher-Tableau des verwendeten Runge-Kutta-Nyström- Verfahrens.	56
4.1	Parameterwerte der beiden Laserpulse der Simulationen.	71
4.2	Materialparameter mitsamt Quelle der Simulationen.	72
4.3	Parameterwerte der beiden Laserpulse von Saydanzad et al. [41]. .	72
4.4	Auswertung der CEP mittels der Streaking-Spektren.	87

Programmcodeverzeichnis

3.1	Umwandlung des Zeitsignals des elektrischen Feldes $E(t)$ der Quelle in die äquivalente Stromdichte $J(t)$	22
3.2	Erzeugung zufälliger Werte ε_{rand} nach vorgegebener PDF $\rho(\varepsilon_{CB}^*)$ im Bereich von 0 bis ε_{max}	38
3.3	Programmiertechnische Umsetzung des Runge-Kutta-Nyström-Verfahrens 4. Ordnung.	57
3.4	Numerische Berechnung der Integralfunktionen eines beliebigen Integranden $func2integrate(t)$	66

Abkürzungsverzeichnis

CEP	Träger-Einhüllenden-Phase (engl. <i>carrier envelope phase</i>)
COE	Mittelwert der Energie (engl. <i>center of energy</i>)
DIIMFP	differenzielle inelastische inverse mittlere freie Weglänge (engl. <i>differential inelastic inverse mean free path</i>)
DOS	Zustandsdichte (engl. <i>density of states</i>)
EMFP	elastische mittlere freie Weglänge (engl. <i>elastic mean free path</i>)
FDTD	Finite Difference Time Domain
FFT	schnelle Fourier-Transformation (engl. <i>fast Fourier transform</i>)
HHG	Erzeugung hoher Harmonischer (engl. <i>high harmonic generation</i>)
IMFP	inelastische mittlere freie Weglänge (engl. <i>inelastic mean free path</i>)
IR	Infrarot
LSP	lokales Oberflächenplasmon (engl. <i>localized surface plasmon</i>)
NRMSE	normalisierte Wurzel der quadratischen Abweichung (engl. <i>normalized root-mean-square error</i>)
PDF	Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion (engl. <i>probability density function</i>)
PEEM	Photoemissions-Elektronenmikroskopie (engl. <i>photoemission electron microscopy</i>)
PML	Perfectly-Matched-Layer
RMSE	Wurzel der quadratischen Abweichung (engl. <i>root-mean-square error</i>)
SPP	Oberflächenplasmon-Polariton (engl. <i>surface plasmon polariton</i>)
TEM	transversalelektromagnetische Mode
TOF	Laufzeitverfahren (engl. <i>time of flight</i>)

TRMFP	mittlere freie Weglänge des Transports (engl. <i>transport mean free path</i>)
VMI	Velocity-Map-Imaging
XUV	extrem Ultraviolett

1 Einleitung

Die Geschichte der Plasmonik beginnt bereits in der Zeit des römischen Reichs [1]. Lange bevor Wissenschaftler die optischen Eigenschaften von metallischen Nanopartikeln untersuchten, nutzten Künstler Gold und Silberpartikel für die Kolorierung von Glas in verschiedensten Farben. Erst zu Beginn des 20. Jahrhunderts folgten die ersten mathematischen Beschreibungen von Sommerfeld [2] und Zenneck [3] im Zusammenhang mit der Ausbreitung von Radiowellen an Oberflächen eines Leiters [4]. Mitte desselben Jahrhunderts wurden die hier auftretenden kollektiven Elektronenbewegungen erstmals als Plasmaschwingungen beschrieben [5] und ihre systematische Anregung untersucht [6, 7]. Zur Wende des 21. Jahrhunderts gewann das Feld der Plasmonik schließlich enorm an Popularität [8]. In diesem Zeitraum wurde innerhalb weniger Jahre gezeigt, dass metallische Nanodrähte deutlich kleinere optische Schaltkreise als dielektrische Wellenleiter ermöglichen [9], Metallfilme mit Löchern im Nanometerbereich eine außerordentlich hohe optische Transmission besitzen [10] und ein einfacher metallischer Film als optische Linse fungieren kann [11].

Infolgedessen entwickelten sich in den vergangenen Jahren neue Anwendungsbereiche wie hochleistungsfähige optische Nahfeldmikroskopie und Biosensorikmethoden [8]. Auch in jüngster Zeit sind viele neue Technologien entwickelt worden, in denen der Einsatz von Plasmonik vielversprechend erscheint. So könnte beispielsweise mittels Nanopartikeln die Krebsbehandlung revolutioniert werden, indem diese als Tumormarker eingesetzt werden und so lediglich Krebszellen zerstören [12–14]. Eine Methode ist dabei die gezielte lichtinduzierte Erwärmung der Nanopartikel [15]. Auch bei der Entwicklung von Computerchips ist der Bereich der Plasmonik vielversprechend [16, 17]. So bewegt sich die Plasmonik auf Zeitskalen im Femto- und sogar Attosekundenbereich ($1\text{ fs} = 10^3\text{ as} = 10^{-15}\text{ s}$) [18]. Aufgrund der Lichtgeschwindigkeit im Vakuum von rund $c \approx 3 \frac{\text{nm}}{\text{as}}$, folgt hieraus unweigerlich auch eine räumliche Beschränkung im Nanometerbereich ($1\text{ nm} = 10^{-9}\text{ m}$). Somit wären theoretisch Frequenzen im Terra- und Petahertzbereich bei gleichzeitigen Größenabmessungen im Nanometerbereich erreichbar [8].

Zur Messung physikalischer Phänomene auf derartigen Zeitskalen werden Messaufbauten benötigt, deren Reaktionszeit kleiner als diejenige des zu messenden Prozesses ist [19]. Durch Entwicklungen in der ultraschnellen Laserphysik und in spektralen Selektionstechniken der energiereichen hochharmonischen

Strahlung konnte die Pulsdauer der hohen Harmonischen in den Bereich von etwa zehn Attosekunden reduziert werden [20]. Die Attosekunden-Streaking-Technik wurde zu einem etablierten Verfahren für die Untersuchung grundlegender Prozesse, die auf dieser Zeitskala stattfinden.

Ziel dieser Arbeit ist es eine Simulationsumgebung zu schaffen, in welcher derartige Attosekunden-Streakingspektroskopie Experimente zur Untersuchung von plasmonischen Feldern simuliert werden können. Diese beruht dabei auf der sogenannten Pump-Probe-Technik. Mithilfe eines Laserpulses im extrem ultravioletten (XUV) Bereich werden Photoelektronen in der zu untersuchenden Nanogeometrie angeregt und anschließend emittiert. Diese werden daraufhin vom plasmonischen Feld beschleunigt, welches durch einen zweiten Infrarotlaserpuls (IR) angeregt wurde. Die beiden Pulse besitzen dabei einen bekannten Zeitabstand. Anhand der beispielsweise durch einen Laufzeitdetektor (TOF, engl. *time of flight*) gemessenen Spektren lassen sich anschließend Rückschlüsse auf das zugrundeliegende plasmonische Feld schließen.

In dieser Arbeit werden zunächst die theoretischen Grundlagen der Plasmonik und der Erzeugung ultrakurzer XUV-Laserpulse gelegt. Anschließend wird auf die Theorie und programmiertechnische Umsetzung der Simulationsumgebung zugrundeliegenden physikalischen Phänomene eingegangen. Hierfür wird die Simulation in drei Abschnitte aufgeteilt: die Berechnung der mittels des IR-Pulses erzeugten plasmonischen Felder, den Photoemissionsprozess der durch den XUV-Puls angeregten Elektronen und der Lösung der Bewegungsgleichung der Photoelektronen im elektromagnetischen Feld aus Schritt eins. Vor der abschließenden Zusammenfassung mit Ausblick folgt die Testung der zuvor entwickelten Simulationsumgebung an einigen Beispielgeometrien.

2 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die übergeordneten theoretischen Grundlagen gelegt, welche nicht direkt die in dieser Arbeit entwickelte Simulationsumgebung betreffen. Hierfür werden zum einen die Grundlagen der Plasmonik erläutert und die zwei grundlegenden Arten von plasmonischen Feldern näher beleuchtet. Zum anderen wird auf die Erzeugung ultrakurzer Laserpulse aus hohen Harmonischen eingegangen.

2.1 Plasmonik

Plasmonen wurden ursprünglich als elementare Anregung von Plasma, d.h. freie Elektronen oder ionisierte Atome, eingeführt [21]. Heutzutage wird in diesem Subfeld der Nanophotonik die Beschränkung von elektromagnetischen Feldern auf Bereiche untersucht, welche in derselben Größenordnung oder kleiner als deren Wellenlänge liegen [4]. Diese Beschränkung basiert auf Wechselwirkungsprozessen zwischen elektromagnetischer Strahlung und den Leitungsbandelektroden an metallischen Grenzflächen oder in kleinen metallischen Nanostrukturen. Dabei wird eine Verstärkung des optischen Nahfelds erzeugt, dessen räumliche Größe im Sub-Wellenlängenbereich liegt. Plasmonen treten zum einen als lokale Oberflächenplasmonen (LSPs, engl. *localized surface plasmons*) in Zusammenhang mit einer lokalen Feldüberhöhung und zum anderen als Oberflächenplasmon-Polaritonen (SPPs, engl. *surface plasmon polaritons*) auf [22]. Letztere breiten sich dabei im Medium, beispielsweise plasmonischen Wellenleitern, nach deren Anregung mittels eines Laserpulses oder eines CW-Laserstrahls aus.

Im Folgenden werden zunächst zwei zentrale Materialeigenschaften, die dielektrische Funktion und die Plasmafrequenz, näher beleuchtet. Dabei wird für die dielektrische Funktion ein Modell eingeführt, mit dem diese approximiert werden kann. Abschließend wird auf die eben erwähnten Arten von Plasmonen näher eingegangen.

2.1.1 Modellierung der dielektrischen Funktion mithilfe des Drude-Lorentz-Modells

In diesem Kapitel wird die Approximation der dielektrischen Funktion $\epsilon(\omega)$ mithilfe des Drude-Lorentz-Modells näher beleuchtet.

So können Eigenschaften von freien Ladungselektronen qualitativ mithilfe von Drude-Metallen beschrieben werden. Bei diesem semi-klassischen Modell werden mehrere Annahmen getroffen [23]. Zum einen bewegen sich Elektronen in der Zeit zwischen zwei Kollisionen geradlinig, falls kein externes elektrisches Feld anliegt. Somit werden die Interaktionen zwischen den Elektronen untereinander (*independent electron approximation*) und mit den Ionen des Metallgitters (*free electron approximation*) vernachlässigt. Zum anderen wird die Zeitspanne, in der eine Kollision stattfindet, als infinitesimal klein angenommen. Dementsprechend wird die Geschwindigkeit des Elektrons bei dieser Kollision abrupt geändert. Der detaillierte Stoßmechanismus ist dabei nicht von Bedeutung. Die Wahrscheinlichkeit einer solchen Kollision beträgt pro Zeiteinheit $1/\tau$, wobei τ als Relaxationszeit bezeichnet wird. Diese ist ein Maß für die durchschnittliche Zeit eines Elektrons zwischen zwei Kollisionen. Zusätzlich wird angenommen, dass Elektronen allein durch Stöße das thermische Gleichgewicht mit deren Umgebung erreichen. Unter diesen Annahmen kann die dielektrische Funktion $\epsilon(\omega)$ wie folgt beschrieben werden [21].

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma} \quad (2.1)$$

Dabei ist ω_p die Plasmafrequenz, $\gamma = 1/\tau$ die Dämpfungskonstante und ϵ_{∞} die Permittivität im Grenzfall bei unendlich hohen Frequenzen. Letztere entspricht üblicherweise $\epsilon_{\infty} = 1$, da Elektronen und Atome auf das angelegte elektromagnetische Feld bei zu hohen Frequenzen nicht reagieren können.

Die Plasmafrequenz stellt eine zentrale Eigenschaft von Materialien im Bereich der Plasmonik dar. Sie kann als die Eigenfrequenz einer freien Schwingung von einem freien Elektronengas interpretiert werden [4]. Diese ist unter anderem ein Maß für die Zeitskala, in der ein System auf eine externe Störung des elektromagnetischen Feldes reagiert [19]. Die Plasmafrequenz kann über die Elektronendichte N im Material berechnet werden [21].

$$\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_e}} \quad (2.2)$$

Für verschiedene Materialien ist die Plasmafrequenz in Tab. 2.1 dargestellt. Diese liegen für die hier aufgeführten Metalle in einer Größenordnung von 10 eV .

Tabelle 2.1: Plasmafrequenz verschiedener Metalle [21].

Metall	ω_p [eV]	ω_p [10^{15} Hz]
Ag	9.01	13.69
Au	9.03	13.72
Al	14.98	22.76
Cu	10.83	16.45
Pt	9.59	14.57
Ti	7.29	11.08
Ni	15.92	24.19

Für die Herleitung der dielektrischen Funktion wird ein Elektron in einem monochromatischen, zeitabhängigen elektrischen Feld $\vec{E}(t)$ betrachtet.

$$\vec{E}(t) = \vec{E}(\omega) \operatorname{Re}[\exp(-i\omega t)] \quad (2.3)$$

Aus klassischer Sicht ergibt sich so aus der elektrischen Kraft $\vec{F}_{el}(t) = -e\vec{E}(t)$ und der Dämpfungskraft durch Reibung $\vec{F}_d = -\vec{p}(t)/\tau$ folgende Bewegungsgleichung für das Elektron.

$$\frac{d\vec{p}(t)}{dt} = -\frac{\vec{p}(t)}{\tau} - e\vec{E}(t) \quad (2.4)$$

Für das Anfangswertproblem $\vec{p}(0) = 0$ lässt sich aus dieser Differentialgleichung die folgende Lösung herleiten.

$$\vec{p}(t) = -\frac{e\vec{E}(t)}{1/\tau - i\omega} \quad (2.5)$$

Somit ergibt sich auch für den Impuls eine harmonische Schwingung $\vec{p}(t) = \vec{p}(\omega) \operatorname{Re}[\exp(-i\omega t)]$, deren frequenzabhängige Amplitude $\vec{p}(\omega)$ analog zu Gl. 2.5 berechnet werden kann. Zudem lässt sich die Stromdichte $\vec{J}(t)$ mithilfe der Elektronendichte N und der Elektronenmasse m_e aus dem Impuls der Elektronen berechnen.

$$\vec{J}(t) = -\frac{Ne\vec{p}(t)}{m_e} = \frac{Ne^2\tau}{m_e} \frac{1}{1 - i\omega\tau} \vec{E}(t) \quad (2.6)$$

Die Faktoren vor der elektrischen Feldstärke werden optische Leitfähigkeit $\sigma(\omega) = \frac{Ne^2\tau}{m_e} \frac{1}{1 - i\omega\tau}$ genannt. Setzt man diese in Gl. 2.6 ein, so erhält man das ohmsche Gesetz $\vec{J} = \sigma\vec{E}$.

Mittels der beiden Maxwellgleichungen $\vec{\nabla} \times \vec{E}(t) = -\frac{\partial \vec{B}(t)}{\partial t}$ und $\vec{\nabla} \times \vec{H}(t) = \vec{J}(t) + \frac{\partial \vec{D}(t)}{\partial t}$ und der Beziehung der Lichtgeschwindigkeit $c = \frac{1}{\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}}$ lässt sich zudem folgende Wellengleichung herleiten.

$$\begin{aligned}
 \vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}(t)) &= -\frac{\partial}{\partial t} (\vec{\nabla} \times \vec{B}(t)) \\
 \Rightarrow \nabla(\nabla \cdot \vec{E}(t)) - \nabla^2 \vec{E}(t) &= -\frac{\partial}{\partial t} \mu_0 (\vec{\nabla} \times \vec{H}(t)) \\
 \Rightarrow -\nabla^2 \vec{E}(t) &= -\frac{\partial}{\partial t} \mu_0 \left(\vec{J}(t) + \frac{\partial \epsilon_0 \vec{E}(t)}{\partial t} \right) \\
 &= -\frac{\partial}{\partial t} \mu_0 (\sigma(\omega) \vec{E}(t) - i\omega \epsilon_0 \vec{E}(t)) \\
 &= i\omega \mu_0 \sigma(\omega) \vec{E}(t) + \omega^2 \epsilon_0 \mu_0 \vec{E}(t) \\
 &= \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \left(1 + \frac{i\sigma(\omega)}{\epsilon_0 \omega} \right) \vec{E}(t)
 \end{aligned} \tag{2.7}$$

Aus der Formel der elektrischen Feldstärke einer monochromatischen Planwelle $\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}(\omega) \operatorname{Re}[\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r} - i\omega t)]$ mit dem Wellenvektor \vec{k} ergibt sich eine ähnliche Gleichung für den Ausdruck $-\nabla^2 \vec{E}(t)$.

$$\begin{aligned}
 -\nabla^2 \vec{E}(t) &= \vec{k}^2 \vec{E}(t) \\
 &= \left(\frac{\omega}{c/n(\omega)} \right)^2 \vec{E}(t) \\
 &= \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \epsilon(\omega) \vec{E}(t)
 \end{aligned} \tag{2.8}$$

Hierbei entspricht $c_m = c/n(\omega)$ der Lichtgeschwindigkeit im Medium mit einem komplexen Brechungsindex von $n(\omega)$. Für ein nicht-magnetisches Metall (Permeabilität $\mu_r = 1$) kann zudem aus diesem Brechungsindex die Permittivität $\epsilon(\omega) = n(\omega)^2$ berechnet werden.

Vergleicht man die beiden Gleichungen 2.7 und 2.8 miteinander, so erhält man einen Ausdruck für die dielektrische Funktion $\epsilon(\omega)$.

$$\begin{aligned}
 \epsilon(\omega) &= 1 + \frac{i\sigma(\omega)}{\epsilon_0\omega} \\
 &= 1 + \frac{i}{\epsilon_0\omega} \frac{Ne^2\tau}{m_e} \frac{1}{1 - i\omega\tau} \\
 &= 1 - \frac{1}{\omega^2 + i\omega/\tau} \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_e} \\
 &= 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega/\tau}
 \end{aligned} \tag{2.9}$$

Im letzten Schritt wurde die in Gl. 2.2 eingeführte Plasmafrequenz ω_p eingesetzt. Substituiert man abschließend noch die Relaxationszeit durch die Dämpfungs-konstante $\gamma = 1/\tau$, so erhält man den Ausdruck aus Gl. 2.1.

In der Realität existieren derartige Drude-Metalle nicht. Gerade im Bereich der optischen Frequenzen ($\gtrsim 10^{15}$ Hz) beeinflussen Band-Band-Übergänge von Elektronen im Metall die dielektrische Funktion stark und schaffen somit nicht vernachlässigbare Abweichungen von der Permittivität der Drude-Metalle.

Eine Möglichkeit zur Modellierung dieser Band-Band-Übergänge bietet die Addition von Lorentz-Oszillator-Termen zur dielektrischen Funktion der Drude Metalle in Gl. 2.1.

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{f_p\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma_p} + \sum_{i=1}^N \frac{f_i\omega_i^2}{\omega_i^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_i} \tag{2.10}$$

Der Laufindex i stellt dabei alle möglichen Band-Band-Übergänge dar. Der Parameter f_p bzw. f_i kann als eine Art Gewichtung des jeweiligen Oszillatorterms interpretiert werden. Wie später in Kap. 3.1.4 gezeigt, können die Permittivitäten der entsprechenden Materialien bereits mit wenigen Lorentz-Oszillator-Termen recht genau modelliert werden.

2.1.2 Oberflächenplasmon-Polaritonen (SPPs)

SPPs sind elektromagnetische Anregungen, die sich an der Grenzfläche zwischen einem Dielektrikum und einem Leiter ausbreiten [4]. Diese elektromagnetischen Oberflächenwellen entstehen durch die Kopplung der elektromagnetischen Felder mit den Schwingungen des Elektronenplasmas des Leiters. Theoretisch lassen sich SPPs mithilfe der später in Kap. 3.1 vorgestellten Maxwell-Gleichungen

lösen. Für simple Geometrien, wie der in Abb. 2.1 gezeigten flachen Metallplatte mit unendlicher Ausdehnung in einem Dielektrikum, können dabei analytische Lösungen gefunden werden. In diesem Fall kann die Dispersionsrelation wie folgt beschrieben werden.

$$k_{SPP}(\omega) = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_m(\omega)\epsilon_d(\omega)}{\epsilon_m(\omega) + \epsilon_d(\omega)}} \quad (2.11)$$

Dabei ist k_{SPP} der Wellenvektor der SPP und ϵ_m bzw. ϵ_d die dielektrische Funktion des Metalls bzw. des Dielektrikums. Die Oberflächenplasmafrequenz ω_{SP} der Anordnung kann ebenfalls berechnet werden.

$$\omega_{SP} = \frac{\omega_p}{\sqrt{\epsilon_d + 1}} \quad (2.12)$$

Für den Fall großer Wellenvektoren nähert sich die Frequenz der SPP bei einem perfekten Drude-Metall immer weiter an diese Grenzfrequenz an.

Die Entstehung von SPPs ist in Abb. 2.1 dargestellt. Das elektrische Feld des einfallenden Lichtpulses delokalisiert die Leitungsbandelektronen und separiert diese so in positiv und negativ geladene Bereiche [20]. Durch die Ladungsverschiebung baut sich sowohl innerhalb als auch außerhalb des Metalls ein elektrisches Feld auf, welches die Elektronen zu ihrer Ausgangsverteilung zurück beschleunigt. Hierdurch entsteht eine Oszillation der Elektronen und folglich auch ein oszillierendes elektrisches Feld, das sich auf der Oberfläche ausbreitet.

Für die Anregung solcher SPPs gibt es verschiedene Möglichkeiten, wie beispielsweise Prismen- oder Gitterkopplung [24]. Eine direkte Anregung mittels Photonenbestrahlung ist nicht möglich, da der Wellenvektor im Vakuum kleiner als

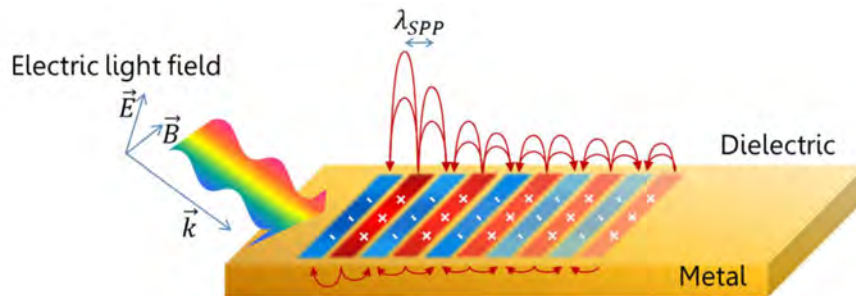


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der Ausbreitung eines SPPs an einer metallisch-dielektrischen Grenzfläche. Abbildung übernommen aus [20].

derjenige des SPPs ist und somit die Wellenvektoren nicht übereinstimmen. Dieser muss daher korrigiert werden, um so eine Übereinstimmung der Phasen zu erreichen. Hierfür wurden spezielle Konfigurationen entwickelt, wie beispielsweise die Kretschmann- [25] und Otto-Konfiguration [26].

2.1.3 Oberflächenplasmonen (LSPs)

LSPs hingegen können direkt von einem oszillierenden elektrischen Feld in kleinen Nanopartikeln angeregt werden, welche sich in der Größenordnung im Sub-Wellenlängenbereich bewegen [22]. Auch diese lassen sich mithilfe der Maxwell-Gleichungen mathematisch beschreiben. Die Anregung erfolgt dabei ähnlich wie bei den SPPs über eine Verschiebung der Leitungsbandelektronen mittels eines Laserpulses. In Abb. 2.2 wird diese Verschiebung relativ zu den positiv geladenen Ionen in Abhängigkeit des externen elektrischen Feldes für eine Metallkugel dargestellt. Dieses Feld wirkt wie eine Art Rückstellkraft auf die Elektronen und beschleunigt diese in Richtung ihrer ursprünglichen Verteilung. Die Oszillation führt zu einer starken Lichtstreuung, was sich wiederum in einer Verstärkung der lokalen elektromagnetischen Felder äußert. Diese Felderhöhungen können je nach Geometrie auch mehrere Größenordnungen betragen.

Auch hier lassen sich für einfache Geometrien analytische Lösungen finden. Für eine Kugel mit dem Radius R gilt dies beispielsweise im Falle der quasi-statischen Näherung $R \ll \lambda$ [4]. In diesem Fall ist die Phase des harmonisch schwingenden elektromagnetischen Feldes über das gesamte Kugelvolumen praktisch konstant. Somit kann die räumliche Feldverteilung für das elektrostatische Problem mit konstantem elektrischem Feld gelöst und anschließend die harmonische Zeitabhängigkeit der Lösung hinzugefügt werden. Aus der Laplace-Gleichung $\nabla^2 \Phi = 0$

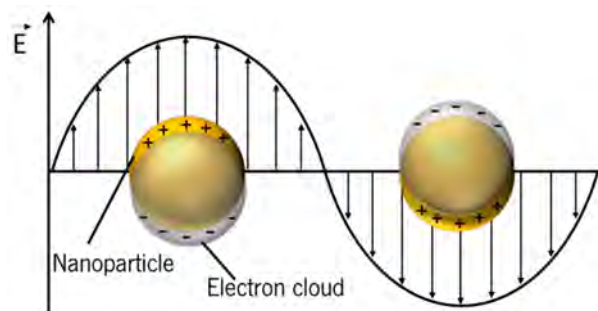


Abbildung 2.2: Veranschaulichung der Anregung eines LSPs in einer Metallkugel. Abbildung übernommen aus [27].

lässt sich so das Potential innerhalb Φ_{in} und außerhalb Φ_{out} der Kugel und abschließend auch die elektrische Feldverteilung $\vec{E} = -\nabla\Phi$ bestimmen.

$$\Phi_{in}(\vec{r}) = - \frac{3\epsilon_d(\omega)}{\epsilon_m(\omega) + 2\epsilon_d(\omega)} E_0 r \cos \theta \quad (2.13a)$$

$$\Phi_{out}(\vec{r}) = - E_0 r \cos \theta + \frac{\vec{p} \cdot \vec{r}}{4\pi\epsilon_0\epsilon_d(\omega)r^3} \quad (2.13b)$$

Dabei ist $E_0 = |\vec{E}_0|$ der Betrag des externen elektrischen Feldes und ϵ_m bzw. ϵ_d die dielektrische Funktion des Metalls bzw. des Dielektrikums. Der Ortsvektor $\vec{r} = \begin{pmatrix} r \\ \theta \\ \varphi \end{pmatrix}$ ist in Kugelkoordinaten angegeben. Das entstehende äußere Potential Φ_{out} kann als Superposition aus dem externen Feld und einem Dipol in der Mitte der Kugel mit dem Dipolmoment $\vec{p} = \epsilon_0\epsilon_d(\omega)\alpha\vec{E}_0$ interpretiert werden, wobei $\alpha = 4\pi R^3 \frac{\epsilon_m(\omega) - \epsilon_d(\omega)}{\epsilon_m(\omega) + 2\epsilon_d(\omega)}$ die Polarisation beschreibt. Somit können auch die elektrischen Felder berechnet werden.

$$\vec{E}_{in}(\vec{r}) = \frac{3\epsilon_d(\omega)}{\epsilon_m(\omega) + 2\epsilon_d(\omega)} \vec{E}_0 \quad (2.14a)$$

$$\vec{E}_{out}(\vec{r}) = \vec{E}_0 + \frac{3\vec{n}(\vec{n} \cdot \vec{p}) - \vec{p}}{4\pi\epsilon_0\epsilon_d(\omega)} \frac{1}{r^3} \quad (2.14b)$$

Hierbei ist \vec{n} der Normalenvektor, der vom Mittelpunkt der Kugel weg zeigt.

Betrachtet man die Polarisation α , so erfährt diese eine Resonanzverstärkung im Fall, dass $|\epsilon_m(\omega) + 2\epsilon_d(\omega)|$ minimal ist. Für kleine oder langsam variierende $\text{Im}[\epsilon_m(\omega)]$ ist dies bei der Bedingung $\text{Re}[\epsilon_m(\omega)] = -2\epsilon_d(\omega)$ (Fröhlich-Bedingung) gegeben. Die zugehörige Mode wird Dipol-Oberflächenplasmon (engl. *dipole surface plasmon*) der Nanokugel genannt. Für ein Drude-Metall im Vakuum ist die Fröhlich-Bedingung bei $\omega = \omega_p/\sqrt{3}$ erfüllt.

2.2 Erzeugung ultrakurzer XUV-Laserpulse

Seit der ersten Demonstration eines modengekoppelten Helium-Neon-Lasers wurden die Grenzen der Laserpulsdauern ständig erweitert, von der Pikosekunden- bis zur Femtosekunden-Zeitskala [22]. Aktuell stellen XUV-Pulse mit einer Länge von unter 80 as die kürzesten realisierbaren Laserpulse

dar. Durch diesen technischen Fortschritt werden Untersuchungen mit immer höherer zeitlicher Auflösung ermöglicht.

In diesem Kapitel wird die Erzeugung solcher ultrakurzen XUV-Laserpulse näher erklärt. Hierzu wird zunächst auf die Erzeugung hoher Harmonischer aus einem treibenden IR-Laserpuls eingegangen. Diese bilden die Grundlage für die Generierung isolierter Attosekundenpulse. Eines der hierfür verwendeten Verfahren, das Amplituden-Gating, wird abschließend erläutert.

2.2.1 Erzeugung hoher Harmonischer

Attosekunden Laserpulse mit hoher Brillanz werden typischerweise in einem Prozess bei der Erzeugung hoher Harmonischer (HHG, engl. *high harmonic generation*) generiert [24]. Hierbei handelt es sich um einen nichtlinearen Effekt, welcher bei der Wechselwirkung von sehr starken Laserpulsen mit einer Intensität von einigen 10^{14} W/cm^2 mit einem gasförmigen Medium auftritt [20]. Dabei wird kohärente Strahlung mit einem ungeraden vielfachen der Laserfrequenz des treibenden Laserpulses ausgestrahlt.

Im von P. B. Corkum entwickelten Dreistufenmodell werden die zugrundeliegenden physikalischen Phänomene aus einer semiklassischen Betrachtung eines einzelnen Gasatoms erläutert [22]. Bei diesem wird der HHG-Prozess in drei Teilschritte unterteilt, welche in Abb. 2.3(a) dargestellt sind.

Zunächst wird ein Elektron emittiert. Dies erfolgt im Bereich der Tunnelionisation, welche nach der Theorie von Keldysh nur in einem Bereich $\gamma_K \ll 1$ auftritt [19]. Dabei ist $\gamma_K = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} = \frac{\omega \sqrt{2m_e I_p}}{eE_0}$ der Keldysh-Parameter. Dieser hängt neben den Konstanten von der Laserfrequenz ω , dem Ionisationspotential des Atoms I_p und der maximalen elektrischen Feldstärke E_0 des Laserpulses ab. Aus diesem Grund wird auch die oben angesprochene hohe Intensität des treibenden Lasers benötigt, welche für die Erzeugung der hohen Harmonischen essenziell ist. In diesem Bereich wird das Coulomb-Potential des Gasatoms aufgrund des externen elektrischen Feldes in eine Richtung erheblich verringert, sodass für die gebundenen Elektronen eine endliche Wahrscheinlichkeit entsteht, durch die verbleibende Potentialbarriere zu tunneln.

Anschließend wird das nun freie Elektron sofort nach dessen Emission durch das elektrische Feld des Laserpulses vom Gasatom wegbeschleunigt [22]. Nach der Umkehrung des Feldes im nächsten Viertel des optischen Zyklus, wird das Elektron zum Atomkern zurückbeschleunigt.

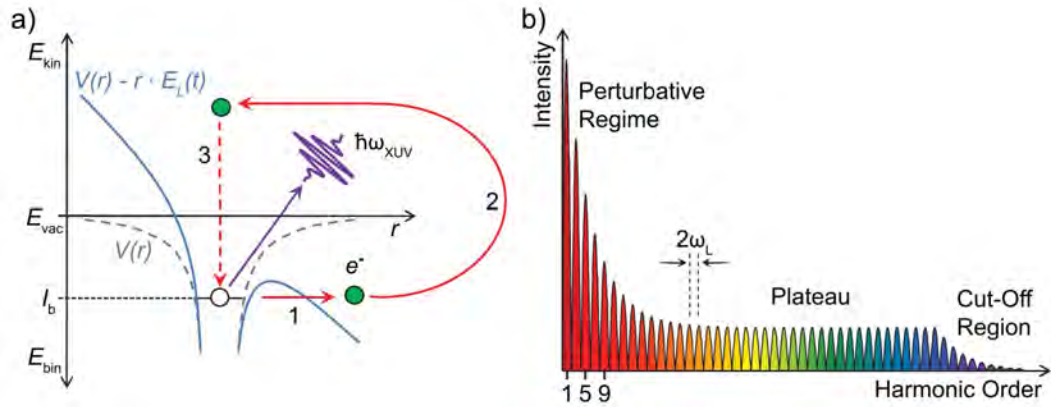


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung des Dreistufenmodells und des HHG-Spektrums. Illustration von P. B. Corkums Dreistufenmodell in (a): 1) Biegung des atomaren Potentials und anschließende Photoionisation aufgrund des Tunneleffekts, 2) freie Ausbreitung des Elektrons im elektrischen Feld des Laserpulses unter Gewinnung kinetischer Energie, 3) Rekombination mit dem Ionenkern unter der Erzeugung eines hochenergetischen Photons. Darstellung des aus diesem Prozess resultierenden HHG-Spektrums in (b) mit dessen drei Bereichen: der Störungsbereich, das Plateau und der Cut-Off-Bereich. Abbildung übernommen aus [24].

Trifft das Photoelektron während dieses Prozesses auf das Gasatom, so besteht die Möglichkeit, dass diese beiden Teilchen rekombinieren [24]. Zudem sind ebenfalls elastische und inelastische Stoßprozesse möglich. In ersterem Fall wird die Energie des Elektrons, welche durch die Beschleunigung durch das elektrische Feld des Laserpulses gewonnen wurde, plus die Austrittsarbeit des Gasatoms in Form eines Photons freigesetzt. Grundsätzlich sind verschiedene Elektronenbahnen möglich, die schlussendlich wieder zu einer Rekombination führen [20]. Dies ist in Abb. 2.4 dargestellt.

Die Photoelektronen mit der höchsten kinetischen Energie rekombinieren nach etwas mehr als einer halben Periodenlänge, kurz bevor diese durch den Vorzeichenwechsel des elektrischen Feldes wieder abgebremst werden würden. Diese Elektronen bilden somit den in Abb. 2.3(b) abgebildeten Cut-Off-Bereich. Die eben beschriebene Abbremsung erfahren Photoelektronen mit einer langen Flugbahn, was wiederum in einem deutlich geringen Energiegewinn resultiert. Auch Elektronen mit der dargestellten kurzen Flugbahn besitzen lediglich eine geringe kinetische Energie, da hier das Photoelektron nur für eine kurze Zeit vom elektrischen Feld beschleunigt werden kann.

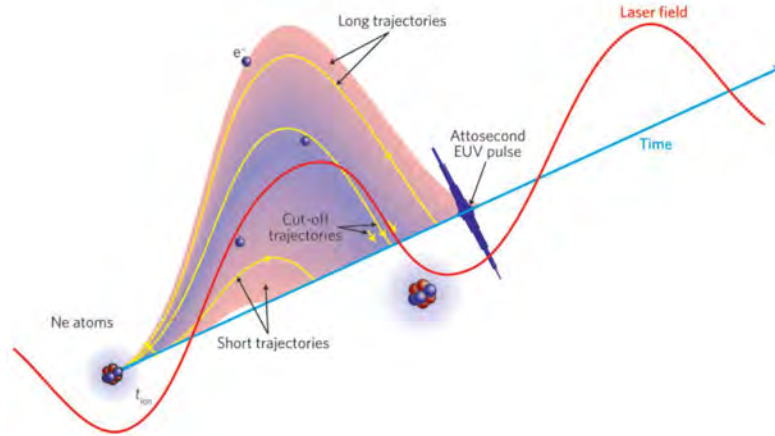


Abbildung 2.4: Darstellung verschiedener Flugbahnen eines Elektrons im HHG-Prozess und den so entstehenden verschiedenen Rekombinationszeiten. Elektronen, die mit dem Vorzeichenwechsel des elektrischen Feldes rekombinieren, gewinnen die meiste kinetische Energie und bilden so den Cut-Off-Bereich. Abbildung übernommen aus [20].

Die maximale Energie ε_{co} eines durch diesen Prozess erzeugten Photons kann mithilfe des ponderomotorischen Potentials U_p und des Ionisationspotentials des Atoms I_p berechnet werden. Ersteres ist dabei ein Maß für den Energiegewinn eines Photoelektrons in einem durchschnittlichen Laserzyklus mit der Frequenz ω und der Amplitude E_0 .

$$\varepsilon_{co} = I_p + 3.17 U_p \quad \text{mit} \quad U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2} \quad (2.15)$$

Für einen kurzen Laserpuls mit einer Zentralwellenlänge von 750 nm und einer Intensität von $5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ beträgt das ponderomotorische Potential $U_p \approx 25 \text{ eV}$ [24]. Somit können bei der Verwendung von Neon als Gas Photonenenergien von über 100 eV erzielt werden, wodurch diese dem extremen ultravioletten Bereich (XUV-Bereich) zugeordnet werden können.

HHG-Spektren besitzen eine in Abb. 2.3(b) dargestellte charakteristische Form [20]. Diese zeigen regelmäßige, äquidistante Peaks bei ungeraden Vielfachen der treibenden Laserfrequenz. Aus quantenmechanischen Gründen werden nur die ungeraden Harmonischen angeregt. Bei niedrigen harmonischen Ordnungen nimmt die Intensität schnell ab, bis schließlich ein Plateau erreicht wird. Dieses fällt abschließend im Cut-Off-Bereich ab.

Die Rekollision der Elektronen findet dabei jeden Halbzyklus des elektrischen Feldes statt. Dies führt somit bei einem Laserpuls, welcher einige Zyklen umfasst,

zu einer Serie von XUV-Pulsen mit einer zeitlichen Breite von einigen hundert Attosekunden. Aus diesem Grund bildet die Erzeugung hoher Harmonischer die Basis einer vielversprechenden Lichtquelle für zeitaufgelöste Experimente im Attosekundenbereich.

2.2.2 Erzeugung eines isolierten Attosekundenpulses mittels Amplituden-Gating

Wie im vorangegangenen Kapitel beschrieben, treten HHG-Lichtpulse meist als Serie kurzer XUV-Pulse auf [20]. Doch für zeitaufgelöste Experimente, bei denen die Dynamik direkt im Zeitbereich beobachtet werden soll, werden in einem Großteil der Fälle isolierte Attosekundenpulse benötigt. Eine Methode stellt dabei das Amplituden-Gating dar.

Hierbei wird der Cut-Off-Bereich der HHG-Spektren verwendet. Das angeregte Gas bestimmt nach Gl. 2.15 die maximale Energie der XUV-Photonen. Mittels spektraler Filterung kann anschließend die Zentralwellenlänge und spektrale Breite des XUV-Pulses festgelegt werden. Experimentell wird dies mit einem mehrlagigen Spiegel realisiert. Dieser ist dabei so ausgelegt, dass dessen maximaler Reflexionsgrad im Cut-Off-Bereich des Spektrums liegt und dessen Bandbreite abdeckt. Zudem kann durch diesen Spiegel ein gewünschter Zeitversatz zwischen dem IR- und dem XUV-Puls mit einer Präzision von $\leq 10 \text{ as}$ generiert werden. Eine mögliche Spiegelkonfiguration ist in Abb. 2.5 dargestellt [19]. Der innere Teil des zweiteiligen Spiegels übernimmt die eben erläuterte Filterung der HHG-Photonen. Zudem ist dieser in eine Raumrichtung verstellbar, wodurch der gewünschte Zeitversatz erzeugt wird. Der äußere Teil hingegen besteht aus einem breitbandigen IR-Spiegel und ist somit für die Reflexion des treibenden IR-Pulses zuständig.

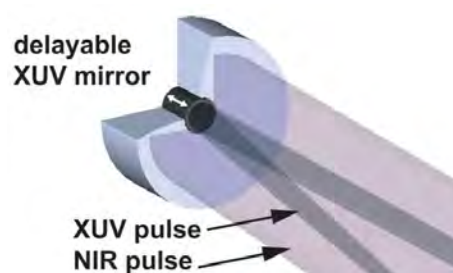


Abbildung 2.5: Mögliche Spiegelkonfiguration zur Steuerung des Zeitversatzes zwischen IR-Puls und XUV-Puls. Abbildung übernommen aus [19].

Die Erzeugung eines solchen isolierten Attosekunden-XUV-Pulses ist in Abb. 2.6 abgebildet. Hierbei ist die Träger-Einhüllenden-Phase (CEP, engl. *carrier envelope phase*) des treibenden IR-Pulses von Bedeutung, also die Phase der elektrischen Feldstärke im Vergleich zum Maximum der Einhüllenden [20]. Bei dem in Abb. 2.6(a) dargestellten kosinusförmigen IR-Puls liefert nur die zentrale Halbwelle genug Energie, um die Elektronen auf die nötige Geschwindigkeit zu beschleunigen, sodass diese ein XUV-Photon erzeugen können. Somit entsteht ein einzelner, isolierter XUV-Puls, da die energiereichsten Photonen nur während dieses einzelnen, zeitlich begrenzten Elektronenrekollisionsereignisses emittiert werden. Wird stattdessen ein sinusförmiger IR-Puls verwendet, werden von beiden zentralen Halbwellen insgesamt zwei Bursts oberhalb der relevanten Photonenenergie erzeugt. Dies ist in Abb. 2.6(b) zu sehen. Die Pulse sind dabei zeitlich versetzt mit identischer Energieverteilung, was deren Trennung in etwaigen Experimenten als äußerst schwierig darstellt. Aufgrund der geringeren Amplitude der elektrischen Feldstärke ist die erzeugte Photonenenergie etwas niedriger als diejenige beim kosinusförmigen Puls. Für Letzteren führt dies zu einem energiereicheren, intensiveren und gleichmäßig abnehmenden Cut-Off-Bereich. Die spektrale Filterung ist in der Abbildung mittels der gestrichelten Kurve um die 95 eV angedeutet.

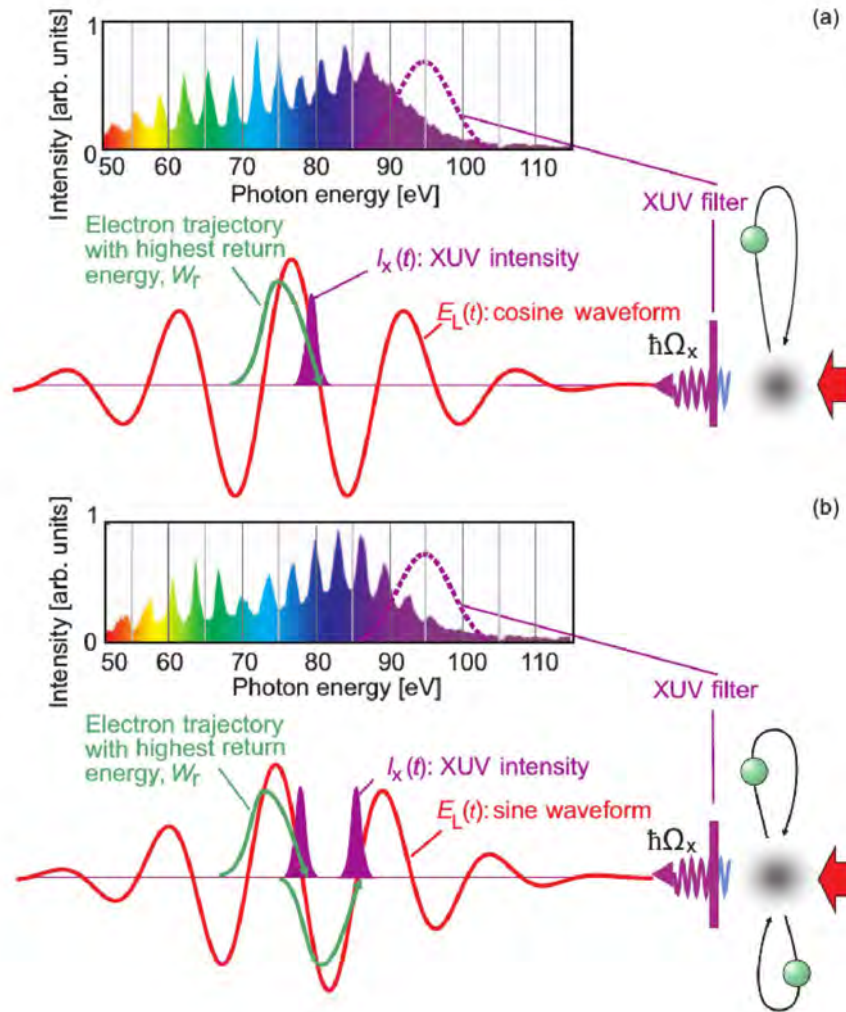


Abbildung 2.6: Einfluss der CEP des treibenden Laserpulses auf die Erzeugung eines einzelnen XUV-Pulses. Ein kosinusförmiger IR-Puls in (a) erzeugt dabei einen gleichmäßig abnehmenden Cut-Off-Bereich, da hier lediglich Elektronen der zentralen Halbwelle zu diesem Teil des Spektrums beitragen. Mittels spektraler Filterung wird ein isolierter XUV-Puls im Attosekundenbereich erzeugt. Bei einem sinusförmigen IR-Puls in (b) entstehen insgesamt zwei Attosekundenpulse mit einer niedrigeren Photonenenergie. Abbildung übernommen aus [28].

3 Erstellung der Simulationsumgebung

In diesem Kapitel werden die theoretischen und numerischen Grundlagen sowie deren Implementierung zur Simulation der Streaking-Spektroskopie mit einer Auflösung im Attosekundenbereich gelegt. Die Simulation kann dabei in drei unabhängige Teilbereiche zerlegt werden, welche im Folgenden genauer erläutert werden.

Zunächst werden die plasmonischen Felder der zu untersuchenden Geometrie mittels des Python-Packages Meep [29] simuliert. Diese werden jeweils von einem IR-Laserpuls mit einer gaußförmigen Einhüllenden angeregt.

$$\vec{E}_{IR}(t) = \vec{E}_{IR,0} \exp\left(-2 \ln 2 \frac{t^2}{\Delta t_{IR}^2}\right) \cos\left(\frac{2\pi c}{\lambda_{IR}} t + \phi_{CEP}\right) \quad (3.1)$$

Dabei ist Δt_{IR} die Halbwertsbreite, λ_{IR} die Wellenlänge, ϕ_{CEP} die CEP und $E_{IR,0} = \sqrt{\frac{2I_{IR}}{\epsilon_0 c}}$ die maximale elektrische Feldstärke des IR-Pulses. Letztere lässt sich aus der Intensität I_{IR} des IR-Lasers berechnen.

Anschließend wird der Photoemissionsprozess nachgebildet. Hierzu werden die durch den XUV-Puls angeregten Elektronen in der Geometrie bis zu deren Emission simuliert. Auch bei diesem wird eine gaußförmige Einhüllende angenommen. Der Zeitversatz der Maxima der beiden Einhüllenden des IR- und XUV-Pulses wird als τ bezeichnet.

$$\vec{E}_{XUV}(t) = \vec{E}_{XUV,0} \exp\left(-2 \ln 2 \frac{(t - \tau)^2}{\Delta t_{XUV}^2}\right) \cos\left(\frac{2\pi \epsilon_{XUV}}{h} (t - \tau)\right) \quad (3.2)$$

Für die Simulation entscheidend sind hierbei die Halbwertsbreite Δt_{XUV} und die mittlere Photonenenergie ϵ_{XUV} des XUV-Pulses.

Im dritten Teil der Simulation wird die Bewegungsgleichung der im vorangegangenen Teil erzeugten Photoelektronen im elektromagnetischen Feld der Meep-Simulationen gelöst. Somit werden hier die Ergebnisse der beiden vorherigen Simulationsabschnitte benötigt.

3.1 Simulation der plasmonischen Felder mithilfe von Meep

Die plasmonischen Felder werden mithilfe des Open-Source-Packages Meep simuliert [29]. Dabei werden die Maxwell-Gleichungen mittels Finite Difference Time Domain Verfahren (FDTD) gelöst [30].

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho \quad (3.3a)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (3.3b)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\vec{J}_B - \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} - \sigma_B \vec{B} \quad (3.3c)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \sigma_D \vec{D} \quad (3.3d)$$

\vec{J} bzw. \vec{J}_B sind die elektrische bzw. magnetische Stromdichte. Für Simulationen ist es in manchen Bereichen zweckdienlich fiktionale magnetische Ströme einzuführen. Diese spielen beispielsweise bei Quellen magnetischer Felder eine Rolle. σ_D und σ_B beschreiben die elektrische und magnetische Leitfähigkeit. Die elektrische bzw. magnetische Flussdichte \vec{D} bzw. \vec{B} lässt sich in die jeweilige Feldstärke \vec{E} bzw. \vec{H} mithilfe der Permittivität ϵ bzw. Permeabilität μ umrechnen.

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} \quad (3.4a)$$

$$\vec{B} = \mu \vec{H} \quad (3.4b)$$

Beim FDTD-Verfahren wird der Raum in ein diskretes Gitter aufgeteilt und die elektromagnetischen Felder in festen Zeitabständen an diesen Punkten berechnet. Somit ist die Lösung sowohl raum- als auch zeitdiskret. Die zugrundeliegenden Differentialgleichungen werden für die so entstandene Diskretisierung approximiert, sodass diese aus Anfangswerten und Randbedingungen numerisch gelöst werden können. Der Fehler der Simulation hängt hierbei von der Diskretisierung ab. Je feiner diese ist, desto geringer fällt dieser aus. Die Ordnung, mit der die numerische Approximation gegen die tatsächliche Lösung konvergiert, wird als Konsistenzordnung bezeichnet.

In Meep wird eine Konsistenz 2. Ordnung durch die Verwendung des Yee-Gitters erreicht [31]. Bei diesem werden \vec{E} und \vec{H} -Feld abwechselnd aus dem jeweils

anderen Feld numerisch im Abstand von $\Delta t/2$ berechnet. Auch räumlich sind die Gitterpunkte der beiden Felder jeweils um die Hälfte der Diskretisierung $(\Delta x, \Delta y, \Delta z)/2$ verschoben, wie in Abb. 3.1 dargestellt. Um das \vec{E} und \vec{H} -Feld auf denselben Gitterpunkten und zu einem gemeinsamen Zeitpunkt speichern zu können, werden die Felder vor der Ausgabe linear im Raum und der Zeit interpoliert.

Die Diskretisierung in der Zeit Δt lässt sich über jene im Raum Δr berechnen [30]. In Meep ist letztere zwingend in allen drei Raumrichtungen identisch ($\Delta r = \Delta x = \Delta y = \Delta z$).

$$\Delta t = S \frac{\Delta r}{c} \quad (3.5)$$

Hierbei ist S die Courant-Zahl, welche eine entscheidende Rolle für die Stabilität spielt. Für eine Simulation in drei Raumdimensionen muss diese die Bedingung $S < n_{\min}/\sqrt{3}$ erfüllen, anderenfalls divergiert die numerische Lösung. Der minimale Brechungsindex ist in den meisten Simulationen $n_{\min} = 1$ und entspricht demjenigen von Vakuum.

Im Folgenden wird die verwendete Simulationsumgebung näher beleuchtet. Dabei wird zunächst auf die in Meep verwendete Einheitenbasis näher eingegangen. Anschließend werden die wichtigsten Bereiche der Simulation, die Quellen, Randbedingungen und Materialien, beschrieben. Zudem wird gezeigt, dass

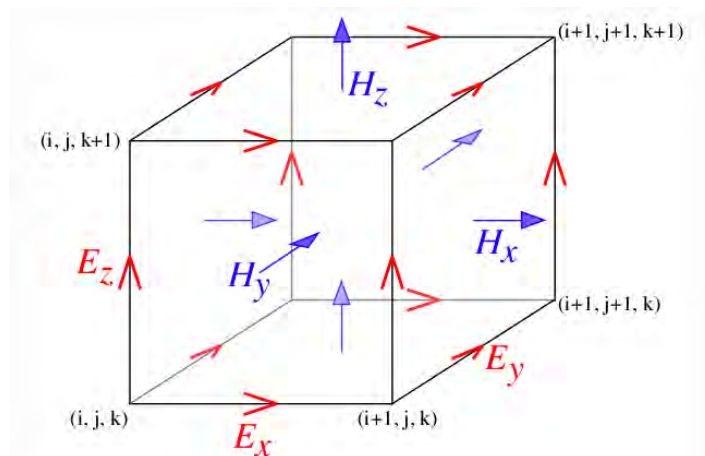


Abbildung 3.1: Darstellung des in den FDTD-Simulationen verwendeten Yee-Gitters. Durch die Verschiebung des Rechengitters von $\vec{E}(\vec{r}, t)$ und $\vec{H}(\vec{r}, t)$ um $(\Delta x, \Delta y, \Delta z)/2$ und $\Delta t/2$ in Raum und Zeit in Bezug aufeinander wird eine Konsistenz 2. Ordnung erreicht. Abbildung übernommen aus [29].

mittels einer simplen Transformation in bestimmten Bereichen der Simulation eine höhere räumliche Auflösung erreicht werden kann. Abschließend wird der grundlegende Aufbau der in dieser Arbeit vorgenommen Simulationen kurz erläutert und die Simulationsumgebung anhand der Ergebnisse von Hengster et al. [32] verifiziert.

3.1.1 Einheiten in Meep

Zur Vereinfachung der Berechnungen werden in Meep dimensionslose Einheiten benutzt, in denen des Weiteren die Konstanten $c = \epsilon_0 = \mu_0 = 1$ verschwinden. Aufgrund der Skaleninvarianz der Maxwell-Gleichungen ist es zudem zweckmäßig ebenfalls skaleninvariante Einheiten zu wählen. Das heißt am Anfang der Simulation wird eine charakteristische Länge a festgelegt, welche einer Längeneinheit entspricht. Aufgrund der Wahl der Konstanten ($c = 1$) ist dies ebenfalls die Einheit der Zeit. Mit einer selbst gewählten Basiseinheit der Stromstärke I_b und einigen Naturkonstanten lassen sich anschließend alle relevanten Einheiten ausdrücken. Diese sind in Tab. 3.1 dargestellt.

Da die Wahl der Basisstromstärke I_b keinen Einfluss auf die Simulation besitzt, kann diese im Nachhinein beliebig gewählt werden. Somit kann die Intensität des simulierten IR-Pulses später in der Simulation der Elektronenbewegungen angepasst werden, ohne dass eine erneute Simulation der elektromagnetischen Felder notwendig ist.

3.1.2 Quellen elektromagnetischer Wellen

Zur Erzeugung von elektromagnetischen Wellen werden in Meep sogenannte transparente Quellen verwendet [34]. Dabei müssen zu den vorgegebenen elektromagnetischen Feldern äquivalente elektrische und magnetische Stromdichten

Tabelle 3.1: Einheitenbasis in Meep [33].

phy. Größe	SI Einheit	SI Dimensionen	Meep Einheit
\vec{E}	N/C	$\frac{ml}{It^3}$	$\frac{I_b}{a\epsilon_0 c}$
\vec{D}	C/m ²	$\frac{tI}{l^2}$	$\frac{I_b}{ca}$
\vec{H}	A/m	$\frac{I}{l}$	$\frac{I_b}{a}$
\vec{B}	T	$\frac{m}{t^2 I}$	$\frac{I_b}{\epsilon_0 c^2 a}$
\vec{J}	A/m ²	$\frac{I}{l^2}$	$\frac{I_b}{a^2}$

\vec{J} bzw. \vec{J}_B spezifiziert werden. Diese besitzen den Vorteil, dass sie aufgrund der Linearität der Maxwell-Gleichungen für einfallende Wellen transparent sind und diese somit nicht beeinflussen.

Die direkte Vorgabe von elektromagnetischen Feldern in der Nähe der Simulationsgrenzen würde zu unphysikalischen Streuungen von einfallenden Wellen auf die Quelle führen. Aus diesem Grund ist die Erzeugung dieser sogenannten harten Quellen in Meep nicht möglich.

Hierdurch ist jedoch zunächst eine Umrechnung des gewünschten Zeitverlaufs der elektrischen Feldstärke $E(t)$ in denjenigen der äquivalenten Stromdichte $J(t)$ nötig. Die Polarisation hingegen kann in Meep als Komponente des zu erzeugenden elektrischen Feldes angegeben werden. In dieser Arbeit wird von einer Polarisation des IR-Pulses entlang der x-Achse ausgegangen. Die Korrektur des Zeitsignals einer elektromagnetischen Quelle im Vakuum wird dabei im Frequenzraum durchgeführt und anschließend in den Zeitbereich rücktransformiert. Die Skalierung der Amplitude ist dabei aufgrund der in Kap. 3.1.1 angesprochenen nachträglichen Wahl der Basisstromstärke I_b von keiner Bedeutung.

$$J_{FT}(\omega) = \frac{E_{FT}(\omega)}{-i\omega} \quad (3.6)$$

Die programmiertechnische Umsetzung ist in Code-Beispiel 3.1 dargestellt. Hierzu wird das Zeitsignal des elektrischen Feldes zu diskreten Zeitschritten ausgewertet und anschließend mittels schneller Fourier-Transformation (FFT, engl. *fast Fourier transform*) in den Frequenzbereich überführt. Dieses Spektrum wird nach Gl. 3.6 korrigiert und durch die inverse FFT in den Zeitbereich zurückgeführt. Um abschließend wieder eine kontinuierliche Funktion zu erhalten, werden die so erhaltenen Werte quadratisch interpoliert.

3.1.3 Randbedingungen und PMLs

Meep unterstützt drei grundlegende Arten von Randbedingungen: Bloch-periodische Randbedingungen, metallische Wände und Perfectly-Matched-Layer-Randbedingungen (PML) [29]. Letztere werden dabei für die Simulation offener Simulationsgrenzen verwendet, wie sie auch in dieser Arbeit vorliegen.

Streng genommen handelt es sich bei PMLs um keine Randbedingung, sondern um ein fiktives Material, welches um die Simulationsgrenzen gelegt wird. Dieses

Programmcode 3.1: Umwandlung des Zeitsignals des elektrischen Feldes $E(t)$ der Quelle in die äquivalente Stromdichte $J(t)$.

```
# FFT des Zeitsignals E(t) berechnen
E_fft = np.fft.fft(E(t))
# Zugehörige Frequenzen ermitteln
omega = 2 * np.pi * np.fft.fftfreq(len(t), dt)

# Äquivalente Stromstärke berechnen
J_fft = E_fft / (-1j * omega)
# Ersten Wert aufgrund von omega[0] == 0 korrigieren
J_fft[0] = 0

# FFT von J in den Zeitbereich ueberfuehren
J_t = np.real(np.fft.ifft(J_fft))
# Am dem Werten zwischen den berechneten Stuetzpunkten
# interpolieren
J = scipy.interpolate.interp1d(t, J_t, "quadratic")
```

wurde so designt, dass es bei sämtlichen Frequenzen und Einfallswinkeln elektromagnetische Wellen absorbiert. Aufgrund der Diskretisierung des Systems kommt es jedoch zu kleinen, numerisch geschuldeten Reflexionen. Aus diesem Grund muss die PML-Schicht in den Simulationen eine endliche Dicke besitzen, in der die Absorptionsrate langsam steigt.

3.1.4 Modellierung der dielektrischen Funktion in Meep

Die dielektrische Funktion des verwendeten Materials muss in Meep mithilfe des in Kap. 2.1.1 beschriebenen Drude-Lorentz-Modells gebildet werden [31].

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{f_p \omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma_p} + \sum_{i=1}^N \frac{f_i \omega_i^2}{\omega_i^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_i} \quad (3.7)$$

Die Parameter f_p , ω_p und γ_p bzw. f_i , ω_i und γ_i werden dabei aus Literaturdaten des optischen, komplexen Brechungsindex $\underline{n} = n + i\kappa$ gewonnen. Dieser steht mit den elektromagnetischen Materialeigenschaften, der relativen Permittivität ϵ_r und der relativen Permeabilität μ_r , im Zusammenhang [21].

$$\underline{n} = \sqrt{\epsilon_r \mu_r} \quad (3.8)$$

Für nicht-magnetische Materialien vereinfacht sich diese Formel, da die relative Permeabilität mit $\mu_r = 1$ angenommen werden kann. Folglich ist es möglich, aus dem Brechungsindex $\underline{n}(\omega)$ die komplexe dielektrische Funktion $\epsilon(\omega)$ zu berechnen.

$$\begin{aligned}\epsilon(\omega) &= \underline{n}(\omega)^2 \\ &= [n(\omega) + i\kappa(\omega)]^2 \\ &= n(\omega)^2 - \kappa(\omega)^2 + i 2n(\omega)\kappa(\omega)\end{aligned}\tag{3.9}$$

Die so erhaltenen Werte werden abschließend mithilfe des Drude-Lorentz-Modells bestmöglich angenähert und so die oben beschriebenen Parameter bestimmt. Aufgrund der Vielzahl an Parametern ist es notwendig, sinnvolle Startwerte für diese vorzugeben. Andernfalls werden vom verwendeten Curve-Fit-Algorithmus [35] keine sinnvollen Ergebnisse gefunden. Diese Startwerte werden aus der Meep-Materialbibliothek entnommen, falls die entsprechenden Materialien zur Verfügung stehen [29]. Ist dies nicht der Fall, so werden in einem iterativen Prozess so lange Lorentz-Terme hinzugefügt, bis das Modell die Daten ausreichend genau abbildet. Als Startwert für jeden Iterationsprozess werden dabei die bereits optimierten Parameter des vorangegangenen Schritts verwendet. Somit ist auch die Anzahl N an Lorentz-Termen in Gl. 3.7 festgelegt. Die Startwerte der Materialien, welche in dieser Arbeit verwendet werden (Siliciumdioxid, hexagonales Bornitrid, Gold, Silber und Graphen), finden sich in Tab. 3.2 wieder. Hierfür wurden Meep-Einheiten bei einer Längenskala von $a = 1 \mu m$ verwendet.

Tabelle 3.2: Startwerte für den Fit-Algorithmus der dielektrischen Funktion mittels des Drude-Lorentz-Modells. Die Daten sind, soweit vorhanden, aus der Meep-Materialbibliothek [29] übernommen.

	i	SiO ₂			h-BN		
		$\omega_i/2\pi$	$\gamma_i/2\pi$	f_i	$\omega_i/2\pi$	$\gamma_i/2\pi$	f_i
Lorentz	1	9.679	0.081	1.120	6.083	0.001	3.263

	i	Au			Ag			Graphen		
		$\omega_i/2\pi$	$\gamma_i/2\pi$	f_i	$\omega_i/2\pi$	$\gamma_i/2\pi$	f_i	$\omega_i/2\pi$	$\gamma_i/2\pi$	f_i
Drude	p	10^{-10}	0.043	$4.0 \cdot 10^{21}$	10^{-10}	0.039	$4.5 \cdot 10^{21}$	10^{-10}	1.846	$1.2 \cdot 10^{21}$
Lorentz	1	0.335	0.194	12.363	0.658	3.134	7.924	0.506	0.490	3.513
	2	0.669	0.278	1.184	3.614	0.565	0.501	1.983	1.968	2.213
	3	2.395	0.702	0.657	6.602	0.052	0.013	3.217	0.992	1.338
	4				7.326	0.739	0.827	3.667	0.570	1.104
	5				16.365	1.951	1.113	3.985	6.942	6.766

Die Optimierung der Ausgleichsfunktion erfolgt mittels der Methode der kleinsten Quadrate. Die quadratischen Abweichungen des Real- und Imaginärteils werden addiert, um so ein Maß für den gesamten Fehler zu erhalten. Die so gefundenen besten Approximationen der Literaturdaten von Gao et al. [36] für Siliciumdioxid, von Lee et al. [37] für hexagonales Bornitrid, von Johnson und Christy [38] für Gold und Silber und von Song et al. [39] für Graphen sind in Abb. 3.2 abgebildet. Die hier dargestellten Approximationen der dielektrischen Funktion mittels des Drude-Lorentz-Modelles werden für alle in dieser Arbeit durchgeführten Meep-Simulationen verwendet. Die Güte der Approximationen lässt sich quantitativ mithilfe der Wurzel der quadratischen Abweichung (RMSE, engl. *root-mean-square error*) und des normierten RMSE (NRMSE, engl. *normalized root-mean-square error*) beschreiben.

$$\text{RMSD} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (\epsilon_{DL,i} - \epsilon_{L,i})^2}{N}} \quad (3.10a)$$

$$\text{NRMSD} = \frac{\text{RMSD}}{\max(\epsilon_L) - \min(\epsilon_L)} \quad (3.10b)$$

Dabei sind ϵ_{DL} die Werte der dielektrischen Funktion des Drude-Lorentz-Modells und ϵ_L die Literaturwerte. Anhand dieser ebenfalls in Abb. 3.2 dargestellten Werte bestätigt sich der bereits optisch erkennbare Eindruck, dass das Modell die Literaturwerte sehr gut reproduziert. So findet sich die größte Abweichung bei der Modellierung von Silber wieder. Jedoch fällt selbst diese mit einem NRMSE von 2.87% noch gering aus. Besonders die zwei Isolatoren werden in dem betrachteten Bereich sehr gut durch das Modell beschrieben. Bei den dielektrischen Funktionen dieser beiden Materialien verschwindet der Imaginärteil, wodurch aufgrund des Nenners in dessen Definition eine Angabe des NRMSE nicht möglich ist.

3.1.5 Erzeugung einer räumlich veränderlichen Ortsauflösung

Wie bereits in Kap. 3.1 erwähnt, unterstützt Meep lediglich eine einheitliche Diskretisierung des Raums. Die Maxwell-Gleichungen besitzen jedoch die Eigenschaft invariant gegenüber sämtlichen Koordinatentransformationen zu sein. Die Voraussetzung hierfür ist, dass auf die Materialien (ϵ und μ), Felder (\vec{E} und \vec{H}) und Quellen (\vec{J} und ρ) einfache Transformationen angewandt werden [40].

3 Erstellung der Simulationsumgebung

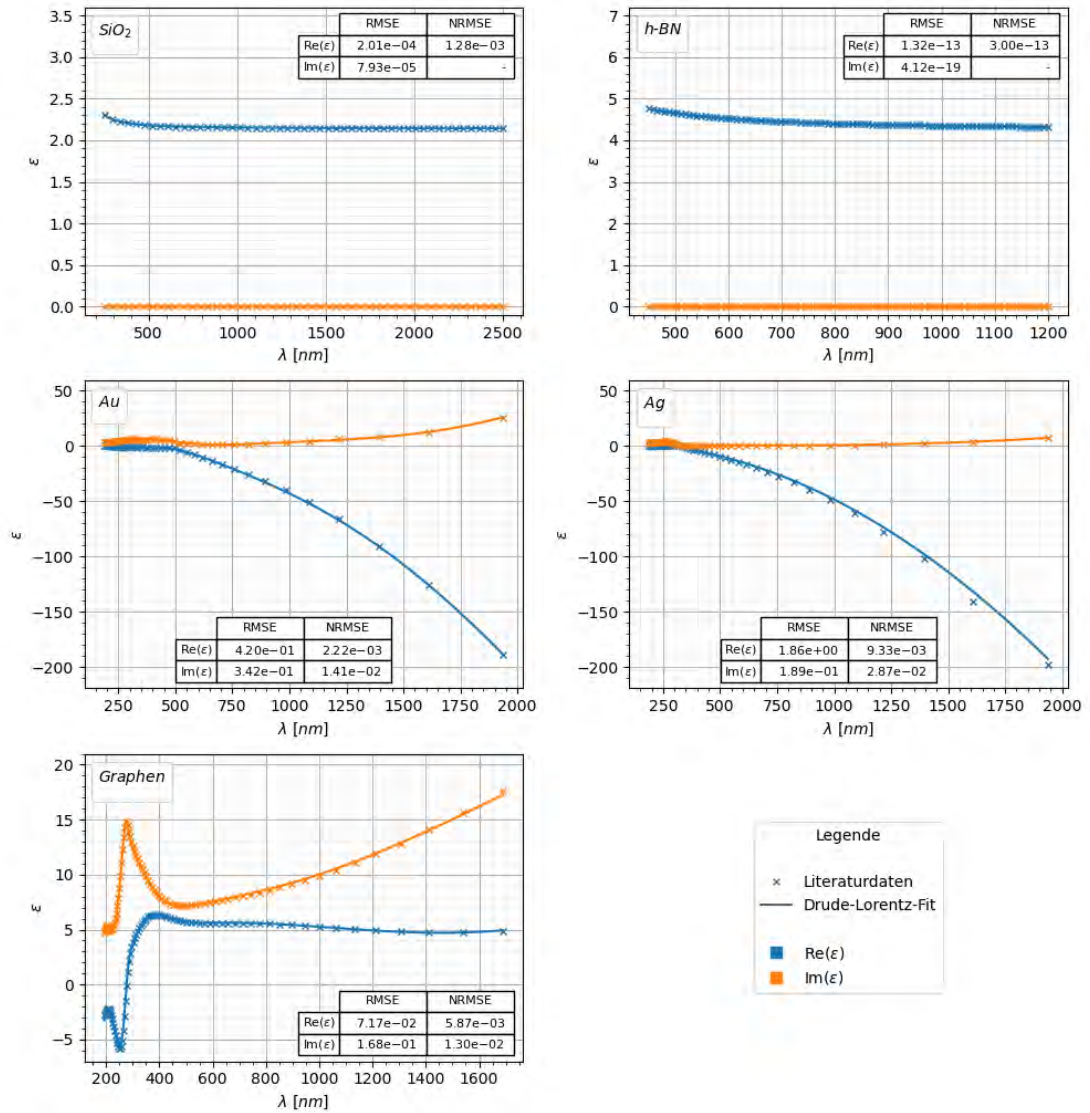


Abbildung 3.2: Vergleich der mittels des Drude-Lorentz-Modells approximierten dielektrischen Funktion mit den Literaturdaten inklusive der zugehörigen RMSE- und NRMSE-Werte. Dabei sind alle in dieser Arbeit verwendeten Materialien aufgelistet. Die Literaturdaten wurden aus [36] für SiO_2 , aus [37] für $h\text{-BN}$, aus [38] für Au und Ag und aus [39] für Graphen entnommen.

Für eine beliebige Koordinatentransformation $\vec{r} \rightarrow \hat{\vec{r}}$ kann mittels der Jacobi-Matrix \mathcal{J} diese Transformation berechnet werden.

$$\mathcal{J} = \begin{pmatrix} \frac{\partial \hat{x}}{\partial x} & \frac{\partial \hat{x}}{\partial y} & \frac{\partial \hat{x}}{\partial z} \\ \frac{\partial \hat{y}}{\partial x} & \frac{\partial \hat{y}}{\partial y} & \frac{\partial \hat{y}}{\partial z} \\ \frac{\partial \hat{z}}{\partial x} & \frac{\partial \hat{z}}{\partial y} & \frac{\partial \hat{z}}{\partial z} \end{pmatrix} \quad (3.11)$$

Mithilfe dieser Matrix lassen sich die oben genannten Größen nach der Koordinatentransformation berechnen.

$$\hat{\vec{E}} = (\mathcal{J}^T)^{-1} \vec{E} \quad (3.12a)$$

$$\hat{\vec{H}} = (\mathcal{J}^T)^{-1} \vec{H} \quad (3.12b)$$

$$\hat{\epsilon} = \frac{\mathcal{J}_\epsilon \mathcal{J}^T}{\det \mathcal{J}} \quad (3.12c)$$

$$\hat{\mu} = \frac{\mathcal{J}_\mu \mathcal{J}^T}{\det \mathcal{J}} \quad (3.12d)$$

$$\hat{\vec{J}} = \frac{\mathcal{J} \vec{J}}{\det \mathcal{J}} \quad (3.12e)$$

$$\hat{\rho} = \frac{\rho}{\det \mathcal{J}} \quad (3.12f)$$

In dieser Arbeit wird die Invarianz der Maxwell-Gleichungen genutzt, um bestimmte Simulationsbereiche bei Bedarf höher aufzulösen. Daher werden lediglich lineare Transformationen benötigt.

$$\hat{\vec{r}} = \begin{pmatrix} \hat{x} \\ \hat{y} \\ \hat{z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} ax \\ by \\ cz \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

Die Faktoren a , b und c bestimmen dabei das Verhältnis der neuen zur ursprünglichen Auflösung. Folglich müssen in der Simulation die Materialeigenschaften ϵ und μ nach Gleichung 3.12c und 3.12d angepasst werden.

$$\hat{\epsilon} = \frac{\epsilon}{abc} \begin{pmatrix} a^2 \\ b^2 \\ c^2 \end{pmatrix} \quad (3.14a)$$

$$\hat{\mu} = \frac{\mu}{abc} \begin{pmatrix} a^2 \\ b^2 \\ c^2 \end{pmatrix} \quad (3.14b)$$

Somit ist es möglich, dass aus isotropen Materialien nach der Transformation anisotrope Materialien entstehen. Auch der transformierte Brechungsindex $\hat{n} = \sqrt{\hat{\epsilon}\hat{\mu}}$, der aus der Kombination von Gl. 3.14a und 3.14b ergibt, ist somit anisotrop.

$$\hat{n} = \frac{n}{abc} \begin{pmatrix} a^2 \\ b^2 \\ c^2 \end{pmatrix} \quad (3.15)$$

Zudem können Brechungsindizes $n_{min} < 1$ auftreten, beispielsweise wenn ein Bereich mit Vakuum eine höhere Auflösung erhält. Daher muss die Courant-Zahl S aus Kap. 3.1 entsprechend angepasst werden. Hierfür wurde ein Wert von $S = \frac{1}{2} \frac{\min(a^2, b^2, c^2)}{abc} < \frac{n_{min}}{\sqrt{3}}$ gewählt. Der Faktor $\frac{\min(a^2, b^2, c^2)}{abc}$ entspricht dem minimalen Wert des anisotropen Brechungsindextensors bei einem vorherigen Brechungsindex von $n = 1$. Um einen gewissen Abstand zur Stabilitätsgrenze zu erlangen, wurde der zweite Faktor mit $\frac{1}{2} < \frac{1}{\sqrt{3}}$ gewählt. Die Stabilität ist in diesem Fall für alle Materialien gewährleistet, welche vor der Transformation einen Brechungsindex $n \geq 1$ besitzen. Die simulierten Felder im transformierten Bereich lassen sich abschließend mithilfe von Gleichungen 3.12a und 3.12b rücktransformieren.

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} a\hat{E}_x \\ b\hat{E}_y \\ c\hat{E}_z \end{pmatrix} \quad (3.16a)$$

$$\vec{H} = \begin{pmatrix} a\hat{H}_x \\ b\hat{H}_y \\ c\hat{H}_z \end{pmatrix} \quad (3.16b)$$

Auf die restliche Simulation hat die Transformation einzelner Bereiche keinen Einfluss.

3.1.6 Aufbau der Simulationen

Der Aufbau der Simulationsumgebung ist in allen durchgeführten Simulationen ähnlich. Exemplarisch ist dieser in Abb. 3.3 dargestellt. Zum einen wurde das Koordinatensystem so festgelegt, dass dieses in x- und y- Richtung symmetrisch zum Ursprung liegt. Zum anderen entspricht in z-Richtung der untere Rand der Simulationsumgebung dem Nullpunkt. Die PML-Schicht wird in diesem Fall nicht berücksichtigt, da diese lediglich für die Absorption der einfallenden Wellen zuständig ist. Die elektromagnetische Quelle befindet sich in der x-y-Ebene am oberen Ende des Simulationsbereichs bei $z = z_{max}$. Damit beschreibt der Zeitpunkt t denjenigen Zeitpunkt, in dem der IR-Puls aus positiver z-Richtung mit dem elektrischen Feld $E(t)$ in die Simulationsumgebung eindringt. Die Definition dieser Zeitskala ist für die spätere Simulation der Elektronenbewegungen von Bedeutung.

Die Schwingungsrichtung des elektrischen Feldes des linear polarisierten IR-Pulses entspricht der x-Richtung, diejenige des magnetischen Feldes der y-

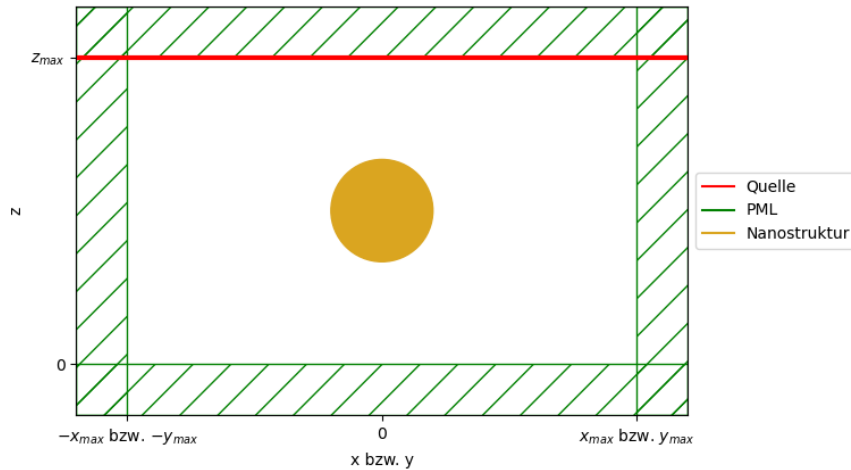


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung der Simulationsumgebung. Die Quelle befindet sich in positiver z-Richtung der mit einer acspml-Schicht umgebenen Simulationsumgebung. Die zu simulierende Nanostruktur wird in der Mitte platziert.

Richtung. Folglich ist der Wellenvektor \vec{k} des IR-Pulses in negative z-Richtung gerichtet. Die zu simulierende Geometrie befindet sich an einem beliebigen Ort innerhalb der Simulationsumgebung. Ist diese achsensymmetrisch bezüglich der x-z-Ebene bzw. y-z-Ebene, so kann diese Symmetrie auch in der Simulation ausgenutzt und somit Rechen- und Speicherkapazität gespart werden. Aufgrund der Wahl der Polarisationsrichtung muss bei der Symmetrie entlang der y-z-Ebene ein Phasenfaktor von -1 eingeführt werden, da das elektrische Feld bei der Spiegelung an dieser Ebene seine Richtung ändern würde. Der anzugebende Phasenfaktor gilt in Meep dabei immer für die elektrische Feldkomponente. Die Symmetrie des magnetischen Feldes wird automatisch aus derjenigen des elektrischen Feldes abgeleitet.

3.1.7 Verifikation der Simulationsumgebung

Zur Verifikation der Simulationsumgebung werden mithilfe von Meep die Ergebnisse von Hengster et al. [32] nachgestellt. Diese wurden hierbei mittels Finite-Integral-Methode im Computer Simulation Technology (CST) Studio Suite durchgeführt. Die untersuchte Geometrie besteht aus zwei Golddisks getrennt von einer Schicht Siliziumdioxid, wie in Abb. 3.4 zu sehen. Die obere Disk besitzt eine Höhe von 1 nm und einen Radius von 54 nm , die Untere eine Höhe von 10 nm und einen Radius von 44 nm . Der dazwischenliegende Kegelstumpf aus SiO_2 ist ebenfalls 10 nm hoch.

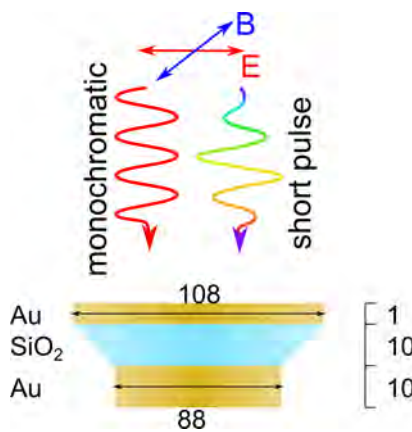


Abbildung 3.4: Illustration des zur Verifikation der Simulationsumgebung genutzten Setups. Ein in x-Richtung polarisierter Laserpuls mit einer zentralen Wellenlänge von $\lambda_{IR} = 800\text{ nm}$ trifft von oben auf einen Au-SiO₂-Au Diskresonator. Die Längenangaben sind dabei jeweils in nm . Abbildung übernommen aus [32].

Der IR-Puls mit einer fourierbegrenzten Pulsdauer von $\Delta t_{IR} = 4.5 \text{ fs}$, einer Wellenlänge von $\lambda_{IR} = 800 \text{ nm}$ und einer CEP von $\phi_{CEP} = -\pi/2$ fällt senkrecht von oben auf die Golddisk mit größerem Durchmesser ein. Das Maximum der Einhüllenden wird nach $t_m = 10 \text{ fs}$ erreicht.

Die räumliche Auflösung wurde analog zur Arbeit von Hengster et al. [32] auf $\Delta r = 1 \text{ nm}$ gesetzt. Aufgrund der geringen Dicke der oberen Golddisk wurde in diesem Bereich die Auflösung auf $\Delta r = 0.1 \text{ nm}$ erhöht. In Meep wurde dies mithilfe der in Kap. 3.1.5 dargelegten Transformationen umgesetzt.

In einer ersten Studie soll der Einfluss der Höhe der oberen Disk auf die Absorptionsspektren untersucht werden. Hierfür wird diese in insgesamt fünf Simulationen von 1 nm auf 3 nm erhöht. Abb. 3.5 zeigt die Gegenüberstellung der Ergebnisse aus den CST Studio Suite und den Meep Simulationen. Neben dem Falschfarbenplot sind hier zusätzlich die Absorptionsspektren der beiden Randfälle ($h_{Au,top} = 1 \text{ nm}$ bzw. $h_{Au,top} = 3 \text{ nm}$) aufgetragen. In beiden Simulationen sind vier Resonanzen erkennbar, welche sich mit zunehmender Dicke der Golddisk verschieben und zu abschließend zwei Resonanzen verschmelzen. Die zugehörigen Resonanzwellenlängen $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$ und λ_4 bei $h_{Au,top} = 1 \text{ nm}$ bzw. λ_1^* und λ_2^* bei $h_{Au,top} = 3 \text{ nm}$ sind in Tab. 3.3 gegenübergestellt. Die beiden Simulationen stimmen dabei gut in dem Abstand der Resonanzwellenlängen zueinander überein. Die Abweichungen betragen hier maximal 8 nm . Die absolute Position hingegen fällt bei den Meep-Simulationen 15 nm bis 28 nm geringer aus als bei denjenigen mit dem CST Studio Suite.

Zur Untersuchung der plasmonischen Moden wurde die Geometrie zudem mit einer monochromatischen Anregung bei den entsprechenden Resonanzwellenlängen simuliert. Das elektrische Nahfeld ist ebenfalls in Abb. 3.5 neben den

Tabelle 3.3: Vergleich der Resonanzwellenlängen aus den von Hengster et al. [32] durchgeführten Simulationen mit denjenigen der Meep-Simulationen für eine Höhe der oberen Golddisk von $h_{Au,top} = 3 \text{ nm}$ und $h_{Au,top} = 1 \text{ nm}$.

	CST Studio Suite Simulationen	Meep Simulationen		CST Studio Suite Simulationen	Meep Simulationen
λ_1^*	650 nm	631 nm	$\lambda_2^* - \lambda_1^*$	70 nm	63 nm
λ_2^*	720 nm	694 nm			
λ_1	662 nm	639 nm	$\lambda_2 - \lambda_1$	47 nm	55 nm
λ_2	709 nm	694 nm	$\lambda_3 - \lambda_2$	93 nm	86 nm
λ_3	802 nm	780 nm	$\lambda_4 - \lambda_3$	219 nm	213 nm
λ_4	1021 nm	993 nm			

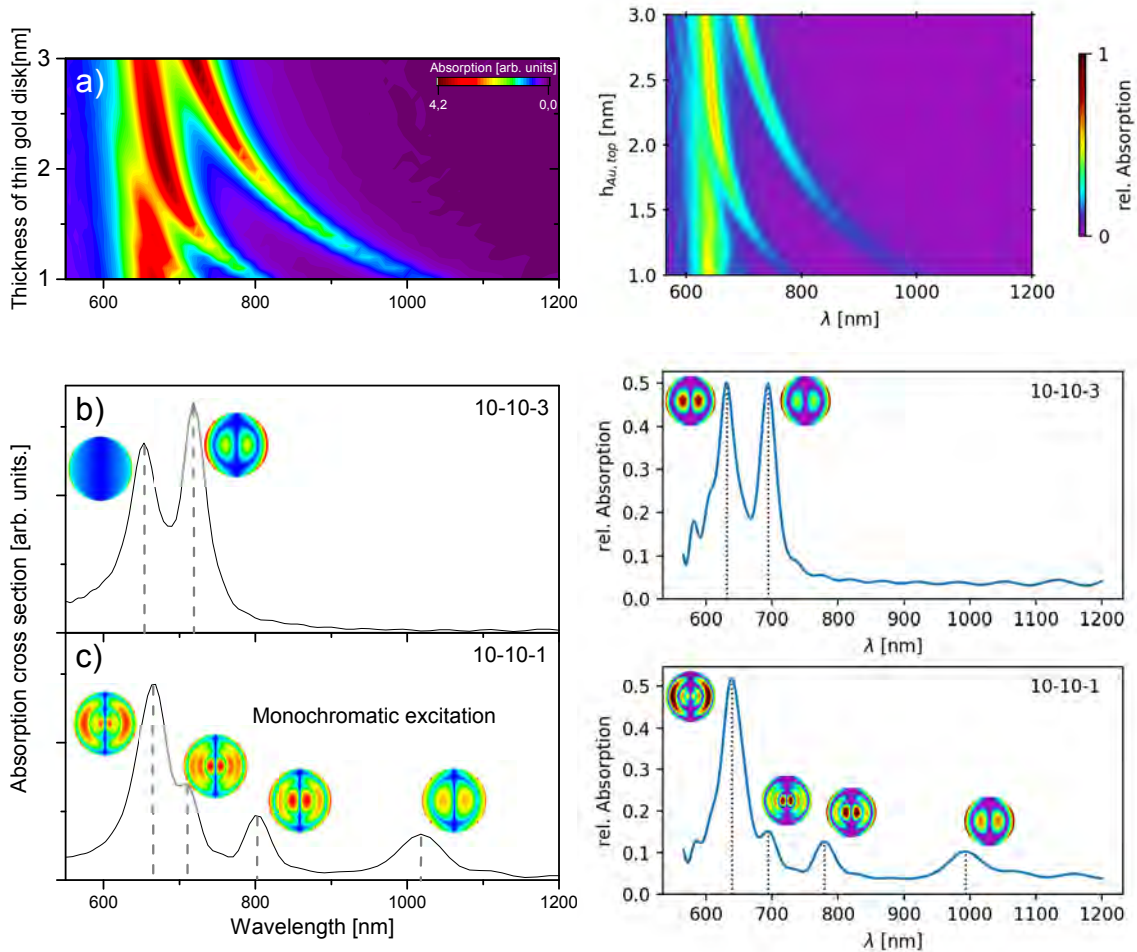


Abbildung 3.5: Vergleich der Absorptionsspektren in Abhängigkeit der Dicke der oberen Golddisk den von Hengster et al. [32] durchgeführten Simulationen (links) mit den Meep-Simulationen (rechts). Darstellung der Absorptionsspektren aller Dicken als Falschfarbenplot in (a) und den einzelnen Spektren bei $h_{Au,top} = 3$ nm in (b) und $h_{Au,top} = 1$ nm in (c). Bei letzteren zwei Spektren sind die jeweiligen plasmonischen Nahfelder nach monochromatischer Anregung mit den Resonanzwellenlängen neben den zugehörigen Peaks dargestellt. Linker Teil der Abbildungen übernommen aus [32].

zugehörigen Absorptionspeaks dargestellt. Wie hierbei zu sehen, besitzt dieses Ähnlichkeiten zu sphärischen transversalelektromagnetischen Moden (TEM). Für die obere Golddisk mit einer Höhe von $h_{Au,top} = 1 \text{ nm}$ sind in beiden Fällen von kleinen zu großen Wellenlängen die Moden TEM 41 bis TEM 11 vorhanden. Letztere Mode bleibt dabei auch bei der dickeren oberen Golddisk erhalten. Der einzige signifikante Unterschied in den beiden Simulationen findet sich in der ersten Resonanzmode wieder. Diese zeigt bei den CST Studio Suite Simulationen eine reine Dipolstruktur, bei den Meep Simulation hingegen erneut eine TEM 11 Struktur.

Zudem wurde der Einfluss des Radius der unteren Golddisk auf die Absorptionsspektren untersucht. Hierzu wird dieser in einem Bereich von 44 nm bis 54 nm variiert, wobei sowohl der Fall $h_{Au,top} = 1 \text{ nm}$ als auch $h_{Au,top} = 3 \text{ nm}$ betrachtet wird. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.6 gegenübergestellt.

Auch in diesem Fall stimmen diese sehr gut miteinander überein. Bei den Simulationen in Abb. 3.6(a) nimmt die Intensität der drei langwelligen Resonanzen mit steigendem Radius ab. Die erste Mode hingegen gewinnt an Intensität und wird leicht in den langwelligeren Bereich verschoben. Betrachtet man die Ergebnisse 3.6(b), so wird auch hier die erste Resonanzmode mit zunehmenden Radius dominanter und verschiebt sich ebenfalls in Richtung längerer Wellenlängen. Die jeweiligen Werte der Resonanzwellenlängen sind bei den CST Studio Suite

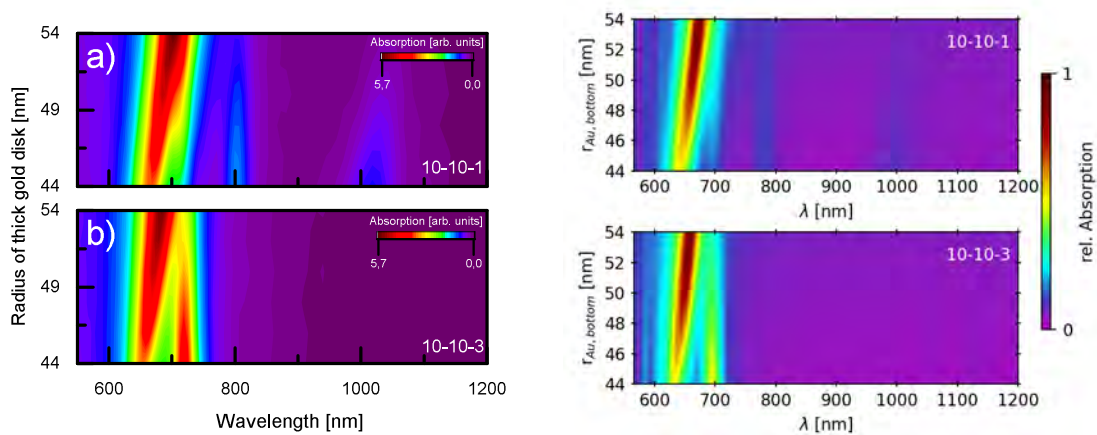


Abbildung 3.6: Vergleich der Absorptionsspektren in Abhängigkeit des Radius der unteren Golddisk den von Hengster et al. [32] durchgeführten Simulationen (links) mit den Meep-Simulationen (rechts). Die Dicke der oberen Golddisk beträgt dabei $h_{Au,top} = 1 \text{ nm}$ in (a) und $h_{Au,top} = 3 \text{ nm}$ in (b). Linker Teil der Abbildungen übernommen aus [32].

3 Erstellung der Simulationsumgebung

Simulationen erneut etwa um 20 nm größer als bei den entsprechenden Meep-Simulationen.

Abschließend soll der zeitliche Verlauf des elektrischen Nahfelds der beiden Simulationen direkt über der oberen Golddisk miteinander verglichen werden. Dieses setzt sich aus der Superposition der angeregten Moden zusammen. Die elektrische Feldstärke wird hierfür entlang der x-Achse in drei verschiedenen Oberflächenebenen ausgewertet: zum einen oben auf der dünnen Golddisk, zum anderen in der Mitte des SiO_2 Kegelstumpfs und drittens an der Unterseite der dicken Golddisk. Untersucht wurden die beiden Geometrien mit 44 nm und 54 nm Radius der unteren Golddisk. Die Ergebnisse der Simulationen sind im Falschfarbenplot in Abb. 3.7 dargestellt. Aufgrund der Superposition der verschiedenen Moden sind hierbei komplexe Modenbilder zu erkennen, welche sich auch zeit-

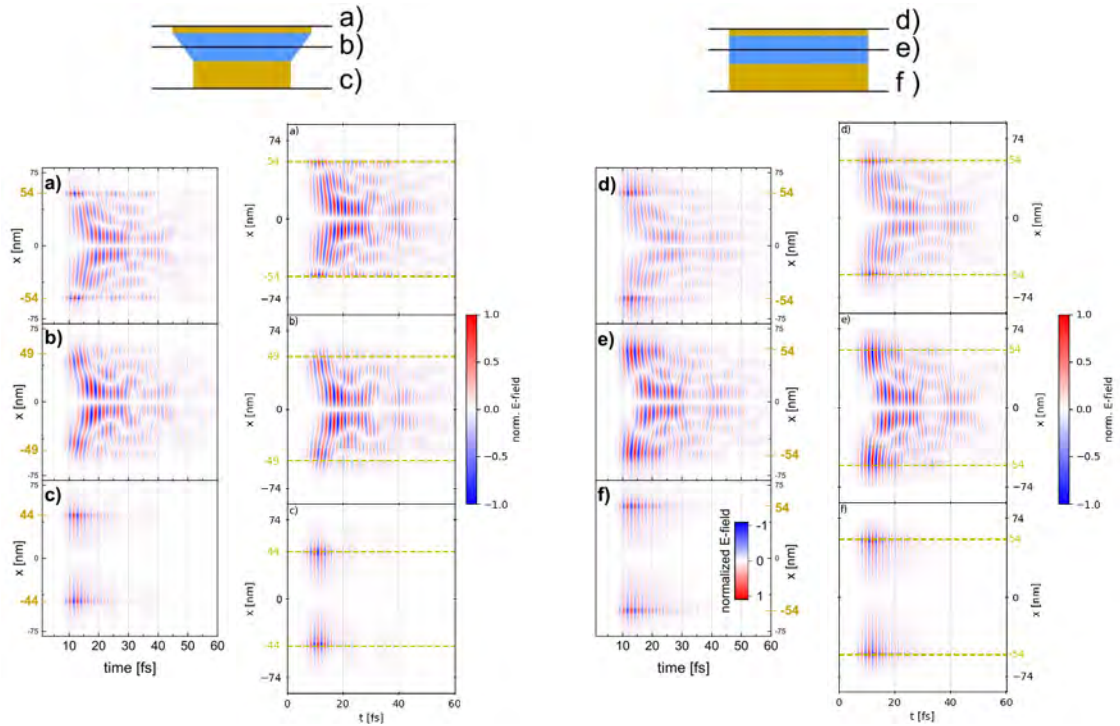


Abbildung 3.7: Vergleich der zeitlichen Entwicklung des plasmonischen Nahfelds bei den von Hengster et al. [32] durchgeführten Simulationen (linke Spalte) mit den Meep-Simulationen (rechte Spalte). Dieses wurde entlang drei verschiedener Höhen auf einer Linie parallel zur x-Achse bei $y = 0$ ausgewertet. Für den Diskresonator mit einem Radius $r_{\text{Au,bottom}} = 44\text{ nm}$ der unteren Golddisk sind die Ergebnisse in (a)-(c) dargestellt, für $r_{\text{Au,bottom}} = 54\text{ nm}$ in (d)-(f). Die Höhen der Auswertelinien entsprechen dem oberen Rand der oberen Golddisk in (a), (d), der Mittellinie des SiO_2 Kegelstumpfes in (b), (e) und dem unteren Rand der unteren Golddisk in (c), (f). Linke Spalte der Abbildungen übernommen aus [32].

lich immer wieder verändern. Nach etwa 60 fs , also 50 fs nach dem Maximum des IR-Pulses, ist die elektrische Feldstärke auf $1/e$ abgeklungen. Vergleicht man die beiden Simulationen untereinander, so sind kaum Unterschiede zu erkennen.

Insgesamt betrachtet stimmen die beiden Simulationsumgebungen sehr gut miteinander überein. Insbesondere bei den simulierten elektrischen Feldern aus Abb. 3.7 waren keine Unterschiede zu erkennen. Für die Lösung der Photoelektronenbewegungsgleichung wird aus den Meep-Simulationen lediglich die elektromagnetischen Felder benötigt, die Absorptionsspektren sind dabei irrelevant. Aus diesem Grund ist dieser Punkt von besonderer Relevanz. Der gravierendste Unterschied besteht in der Mode der ersten Resonanzwellenlänge in Abb. 3.5. Zudem gibt es leichte Abweichungen bei den Resonanzwellenlängen der Absorptionsspektren, welche bei der Meep-Simulation in etwa 20 nm kürzer ausfallen als diejenigen des CST Studio Suites. Eine mögliche Erklärung dieser Abweichungen sind die grundlegend verschiedenen Prinzipien, auf denen die Simulationsalgorithmen beruhen. Während Meep die Maxwell-Gleichungen mithilfe der FDTD-Methode approximiert, werden diese im CST Studio Suite mittels Finite-Integral-Methode gelöst. Des Weiteren können die elektromagnetischen Materialeigenschaften in Meep nicht direkt importiert werden, sondern müssen mithilfe eines Drude-Lorentz-Modells angenähert werden. Auch hier entstehen minimale Unterschiede zwischen den beiden Simulationen.

3.2 Modellierung der Photoemission

In diesem Abschnitt wird der Emissionsprozess der Photoelektronen näher beleuchtet. Dabei werden lediglich die Beiträge der XUV-Einzelphotonen-Elektronen betrachtet, da gegenüber dieser die Above-Threshold-Ionisation des IR-Pulses vernachlässigbar ist [20]. Wie in Abb. 3.8 zu sehen, ist die Modellierung des Emissionsprozesses in drei voneinander unabhängige Schritte unterteilt [41]. Zunächst werden die Leitungsbandelektronen durch die XUV-Photonen angeregt. Anschließend wandern diese Elektronen im Festkörper bis zu dessen Oberfläche und werden abschließend emittiert.

Die gesamte Modellierung erfolgt dabei mittels einer Monte-Carlo-Simulation. Für die Anfangsverteilungen der relevanten physikalischen Größen werden im Folgenden Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen ρ (PDF, engl. *probability density function*) hergeleitet. Mithilfe von diesen werden zufällig N Elektronen erzeugt,

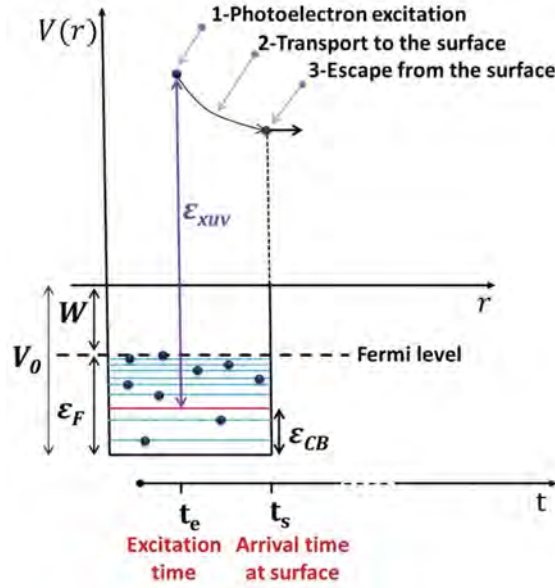


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung der drei Schritte des Photoemissionsprozesses: 1) Anregung des Elektrons, 2) Transport zur Oberfläche und 3) Austritt aus dem Festkörper. Abbildung übernommen aus [41].

für welche anschließend die Bewegungsgleichungen bis zum Austritt aus dem Festkörper gelöst werden.

3.2.1 Anregung der Elektronen

Ein Leitungsbandelektron der Energie ϵ_{CB} wird angeregt, indem es ein einzelnes XUV-Photon der Energie ϵ_{XUV} absorbiert und dabei dessen Energie aufnimmt. Die für diesen Abschnitt der Simulation relevanten Größen sind der Anreizeitpunkt t_e , die Anreizeposition \vec{r}_0 und die Geschwindigkeit \vec{v}_0 .

Der Zeitpunkt $t = 0$ wird für die Simulation der Photoemission so definiert, dass der Mittelpunkt des XUV-Pulses den obersten Rand des Simulationsbereichs z_{max} durchläuft [41]. Wie in Kap. 3.1.6 beschrieben, ist analog auch die Zeitskala der Meep-Simulationen und des IR-Pulses definiert, womit diese konsistent zueinander sind. Der Anreizeitpunkt lässt sich folglich mithilfe der z-Komponente der Anreizeposition r_{z0} berechnen.

$$t_e = \frac{z_{max} - r_{z0}}{c} \quad (3.17)$$

Die Anfangsposition und -geschwindigkeit der angeregten Elektronen wird als unabhängig angenommen [41]. Folglich können die beiden Größen getrennt voneinander betrachtet werden.

Für erstere Größe wird die Annahme einer räumlich konstanten Ladungsverteilung in der betrachteten Geometrie getroffen [41]. Dies ist möglich, da die vom plasmonischen Feld erzeugte Ladungsverschiebung selbst bei großen plasmonischen Feldern im Vergleich zur Gesamtzahl an Ladungsträgern im Leitungsband vernachlässigbar ist.

Zudem wird angenommen, dass die Absorptionsrate von XUV-Photonen in der Geometrie homogen ist. Somit wird die Dämpfung des XUV-Laserpulses vernachlässigt. Folglich ergibt sich eine in der betrachteten Geometrie konstante Wahrscheinlichkeitsdichte für die Anregeposition \vec{r}_0 .

$$\rho_{\text{pos}}(\vec{r}_0) = \frac{1}{V} \begin{cases} 1, & \vec{r}_0 \in \text{Geometrie} \\ 0, & \text{sonst} \end{cases} \quad (3.18)$$

Hieraus muss, je nach Geometrie, eine Funktion entwickelt werden, die eine derartig verteilte Anfangsposition erzeugt. Für zylinder- und kugelförmige Geometrien lassen sich diese beispielsweise mithilfe folgender Gleichungen umsetzen [42].

$$\vec{r}_{0,\text{Zylinder}} = \begin{pmatrix} r \cos(\theta) \\ r \sin(\theta) \\ h \end{pmatrix} \quad \text{mit} \quad \begin{aligned} r &= r_{\text{Zylinder}} \sqrt{\text{rand}()} \\ \theta &= 2\pi \cdot \text{rand}() \\ h &= h_{\text{Zylinder}} \cdot \text{rand}() \end{aligned} \quad (3.19a)$$

$$\vec{r}_{0,\text{Kugel}} = \begin{pmatrix} r \sin(\theta) \cos(\varphi) \\ r \sin(\theta) \sin(\varphi) \\ r \cos(\theta) \end{pmatrix} \quad \text{mit} \quad \begin{aligned} r &= r_{\text{Kugel}} \sqrt{\text{rand}()} \\ \theta &= \arccos(2 \cdot \text{rand}() - 1) \\ \varphi &= 2\pi \cdot \text{rand}() \end{aligned} \quad (3.19b)$$

Die Funktion $\text{rand}()$ gibt dabei einen zufälligen, gleichverteilten Wert im Intervall $[0, 1]$ zurück.

Die Verteilungsfunktion für den Betrag des Geschwindigkeitsvektors $v_0 = |\vec{v}_0|$ wird mittels des Modells des freien Elektronengases bestimmt [41]. Dabei lässt sich die Wahrscheinlichkeitsdichte der Energie der Leitungsbandelektronen vor der Anregung $\rho_{CB}(\varepsilon_{CB})$ mithilfe der Zustandsdichten (DOS, engl. *density of states*) im Leitungsband beschreiben.

$$\rho_{CB}(\varepsilon_{CB}) = \frac{3}{2} f_{FD}(\varepsilon_{CB}) \varepsilon_F^{-3/2} \sqrt{\varepsilon_{CB}} \quad (3.20)$$

ε_F ist hierbei das Fermi-Niveau und $f_{FD}(\varepsilon_{CB})$ die Fermi-Dirac-Verteilung.

$$f_{FD}(\varepsilon_{CB}) = \frac{1}{e^{(\varepsilon_{CB}-\mu)/k_B T} + 1} \quad (3.21)$$

Die geringe Änderung der Zustandsdichte bei Raumtemperatur gegenüber dem absoluten Nullpunkt, welche durch die Fermi-Dirac-Verteilung beschrieben wird, kann jedoch vernachlässigt werden. Aus diesem Grund werden die DOS bei $T = 0 \text{ K}$ verwendet.

$$\rho_{CB}(\varepsilon_{CB}) = \begin{cases} \frac{3}{2} \varepsilon_F^{-\frac{3}{2}} \sqrt{\varepsilon_{CB}}, & 0 \leq \varepsilon_{CB} \leq \varepsilon_F \\ 0, & \text{sonst} \end{cases} \quad (3.22)$$

Die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion für die durch den XUV-Puls übertragene Energie $\rho_{XUV}(\varepsilon_{CB})$ ergibt sich aus der quadrierten Fouriertransformation des elektrischen Feldes des XUV-Pulses.

$$\rho_{XUV}(\varepsilon_{XUV}) = \left(\frac{2}{\pi \sigma_{XUV}^2} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left(-\frac{(\varepsilon_{XUV} - \varepsilon_{XUV}^{ctr})^2}{2\sigma_{XUV}^2} \right) \quad (3.23)$$

Der Term der Standardabweichung σ_{XUV} lässt sich aus der Fouriertransformation ableiten. Diese hängt von der Halbwertbreite Δt_{XUV} des Zeitsignals ab.

$$\sigma_{xuv} = \frac{h}{\pi \Delta t_{XUV}} \sqrt{\frac{\ln(2)}{2}} \quad (3.24)$$

Da ein Elektron die gesamte Energie des Photons aufnehmen muss und dieses so absorbiert, lässt sich die finale Energie des angeregten Elektrons $\varepsilon_{CB}^* = \varepsilon_{CB} + \varepsilon_{XUV}$ leicht berechnen. Die Wahrscheinlichkeitsdichte dieser Energie $\rho_{CB}^*(\varepsilon_{CB}^*)$ kann mittels Faltung der zuvor hergeleiteten PDFs ermittelt werden, da es sich um zwei voneinander unabhängige Zufallsgrößen handelt.

$$\rho_{CB}^*(\varepsilon_{CB}^*) = \int_0^\infty \rho_{CB}(\varepsilon_{CB}) \rho_{XUV}(\varepsilon_{CB}^* - \varepsilon_{CB}) d\varepsilon_{CB} \quad (3.25)$$

Die Faltung wird im Programmcode numerisch berechnet. Anschließend werden aus dieser PDF mithilfe der Inversionsmethode zufällige Werte bestimmt [43]. Dafür muss zunächst die Wahrscheinlichkeitsverteilung P_{CB}^* gebildet werden.

$$P_{CB}^*(\varepsilon_{CB}^*) = \int_0^{\varepsilon_{CB}^*} \rho_{CB}^*(\varepsilon_{CB}) d\varepsilon_{CB} \quad (3.26)$$

Setzt man in die Umkehrfunktion P_{CB}^{*-1} gleichverteilte Werte im Intervall $[0, 1]$ ein, so erhält man Zufallswerte nach der ursprünglichen PDF ρ_{CB}^* .

In der Simulation wurde das Integral 3.26 numerisch gelöst und mit den so erhaltenen Werten die Umkehrfunktion P_{CB}^{*-1} gebildet. Zwischen den Stützstellen wurde linear interpoliert. Der hierfür verwendete Python-Code ist in Code-Beispiel 3.2 dargestellt.

Der Betrag der Anfangsgeschwindigkeit v_0 lässt sich abschließend mittels der Dispersionsrelation für angeregte Leitungsbandelektronen berechnen [41].

$$v_0 = \sqrt{\frac{2\varepsilon_{CB}^*}{m_e^*}} \quad (3.27)$$

Programmcode 3.2: Erzeugung zufälliger Werte ε_{rand} nach vorgegebener PDF $\rho(\varepsilon_{CB}^*)$ im Bereich von 0 bis ε_{max} .

```
# Anzahl an Stuetzstellen
N = 1001
# Energiebereich ueber den integriert wird
epsilon_CB = np.linspace(0, epsilon_max, N)

# Wahrscheinlichkeitsverteilung aus der Wahrscheinlich-
# keitsdichtefunktion rho berechnen
# Hierbei wird das integrate-Modul von SciPy verwendet
P = np.cumsum([0] + [integrate.quad(rho,
                                     epsilon_CB[i],
                                     epsilon_CB[i+1])[0]
                    for i in range(N-1)])

# Umkehrfunktion mittels Interpolation bilden
P_pm1 = scipy.interpolate.interp1d(P, epsilon_CB)

# n Zufallswerte bestimmen
epsilon_rand = P_pm1(np.random.rand(n))
```

Dabei ist m_e^* die effektive Elektronenmasse in der Nanostruktur.

Die Richtung der Geschwindigkeit der angeregten Leitungsbandelektronen ist zylindersymmetrisch entlang der Polarisationsrichtung des XUV-Pulses verteilt. In der in dieser Arbeit entwickelten Simulationsumgebung entspricht dies der x-Achse. Wendet man Fermis goldene Regel auf durch ein XUV-Photon angeregtes Elektron ohne Drehimpuls an, so lässt sich die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion ρ_{θ_v} des verbleibenden Freiheitsgrads $\theta_{\vec{v}_0}$ herleiten. $\theta_{\vec{v}_0}$ bezeichnet dabei den Winkel, den der Geschwindigkeitsvektor \vec{v}_0 mit der x-Achse einschließt. Als Fermis goldene Regel bezeichnet man eine Gleichung aus der quantenmechanischen Störungstheorie, welche die Übergangswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit von einem Anfangs- in einen gewissen Endzustand aufgrund einer Störung des zugrundeliegenden Systems beschreibt [44].

$$\rho_{\theta_v}(\theta_{\vec{v}_0}) = \frac{2}{\pi} \cos^2(\theta_{\vec{v}_0}) \quad (3.28)$$

Diese PDF entspricht somit einer Dipolverteilung [41]. Dieser Winkel wird ebenfalls mithilfe der Inversionsmethode erzeugt. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung P_{θ_v} lässt sich für diesen Fall analytisch berechnen.

$$P_{\theta_v}(\theta_{\vec{v}_0}) = \frac{2}{\pi} \int_0^{\theta_{\vec{v}_0}} \cos^2(\tilde{\theta}) d\tilde{\theta} = \frac{1}{2\pi} (\sin(2\theta_{\vec{v}_0}) + 2\theta_{\vec{v}_0}) \quad (3.29)$$

Somit kann zusammengefasst aus den drei hergeleiteten Wahrscheinlichkeitsdichten ein zufälliger Geschwindigkeitsvektor \vec{v}_0 in kartesischen Koordinaten erzeugt werden.

$$\vec{v}_0 = \begin{pmatrix} v_0 \cos(\theta_{\vec{v}_0}) \\ v_0 \sin(\theta_{\vec{v}_0}) \cos(\varphi_{\vec{v}_0}) \\ v_0 \sin(\theta_{\vec{v}_0}) \sin(\varphi_{\vec{v}_0}) \end{pmatrix} \quad \text{mit} \quad \begin{aligned} v_0 &= \sqrt{\frac{2 P_{CB}^{*-1}(\text{rand}())}{m_e^*}} \\ \theta_{\vec{v}_0} &= P_{\theta_v}^{-1}(\text{rand}()) \\ \varphi_{\vec{v}_0} &= 2\pi \cdot \text{rand}() \end{aligned} \quad (3.30)$$

3.2.2 Elektronentransport an die Oberfläche

Nach der Anregung bewegen sich die Photoelektronen in Richtung Oberfläche, wobei es zu elastischen und inelastischen Streuprozessen kommt [41]. Zwischen diesen Kollisionen wird eine geradlinige Elektronenbewegung angenommen [45]. Somit wird das elektromagnetische Feld in der Nanostruktur vernach-

lässigt, was aufgrund der guten Leitfähigkeit der hier betrachteten Materialien in guter Näherung möglich ist [41].

Elastische Streuprozesse entstehen durch Interaktion der angeregten Elektronen mit dem Coulombpotential der Metallatome im Festkörper [45]. Dabei kommt es zu einer Änderung der Bewegungsrichtung bei einem vernachlässigbar kleinen Energieverlust.

Inelastische Streuprozesse werden durch die Interaktion von angeregten Elektronen mit anderen Leitungsbandelektronen verursacht [45]. Dabei wird angenommen, dass die Bewegungsrichtung unverändert bleibt. Diese Annahme beruht auf der mittleren freien Weglänge des Transports (TRMFP, engl. *transport mean free path*), welche eine Maßeinheit für die Impulsübertragung entlang der Bewegungsrichtung des Elektrons ist. Diese Weglänge ist bei inelastischen Stößen ungefähr eine Größenordnung über derjenigen der elastischen Stöße und somit kann die Änderung der Bewegungsrichtung in diesem Fall vernachlässigt werden. Bei inelastischen Streuprozessen kommt es jedoch zu einem Energietransfer zwischen den beiden Stoßelektronen. Dieser ist für die Erzeugung der Sekundärelektronen verantwortlich.

Es wird angenommen, dass die beiden Stoßprozesse unabhängig voneinander sind [45]. Obwohl diese Annahme insbesondere für niederenergetische Elektronen fragwürdig ist, hat sie auf das Photoelektronenspektrum einen vernachlässigbar kleinen Einfluss. Dies kann damit begründet werden, dass nur Elektronen mit einer Energie größer als der Austrittsarbeit relativ zum Fermi-Niveau in der Lage sind, den Festkörper zu verlassen, und so zum Photoelektronenspektrum beitragen. Die niederenergetischen Elektronen sind somit im Emissionsprozess nicht relevant.

Im Folgenden werden für die beiden Streuprozesse die theoretischen Grundlagen zur Berechnung der mittleren freien Weglänge λ hergeleitet. Diese Größe ist ein Maß dafür, welche Entfernung ein Elektron im Festkörper zurücklegt, bevor es zu einem elastischen bzw. inelastischen Stoß kommt. Der Anteil an Elektronen ohne Stoß N/N_0 nimmt exponentiell mit der zurückgelegten Wegstrecke s ab.

$$\frac{N}{N_0} = e^{-s/\lambda} \quad (3.31)$$

Somit haben nach der Wegstrecke λ in etwa $1 - e^{-1}$ der ursprünglichen Elektronen einen Stoß ausgeführt.

3.2.2.1 Elastische Streuprozesse

Für die Modellierung der elastischen Streuprozesse ist der differentielle Wirkungsquerschnitt $\frac{d\sigma_e}{d\Omega}(\theta)$ von zentraler Bedeutung [46]. Diese Größe ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron unter dem Streuwinkel θ mit dem Coulombpotential der Atomkerne interagieren. Dabei ist θ der Polarwinkel des Potentials. Aufgrund der Radialsymmetrie des Feldes ist dieser Streuprozess zylindersymmetrisch und somit vom Azimutwinkel φ unabhängig.

Die Interaktion eines Elektrons, welches durch eine ebene Welle beschrieben wird, mit dem Coulombpotential erzeugt nach dem Huygensschen Prinzip eine kugelförmige, nach außen gerichtete Welle. Die resultierende Wellenfunktion ist eine Superposition dieser beiden Wellen.

$$\psi = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} + f(\theta)\frac{e^{ikr}}{r} \quad (3.32)$$

Dabei ist $f(\theta)$ die Streuungsamplitude, also die Amplitude der kugelförmigen Welle. Berechnet man den Anteil der Elektronen $|\psi|^2 r^2 d\Omega$, die in eine bestimmte Raumrichtung gestreut werden, so erhält man den differentiellen Wirkungsquerschnitt.

$$\frac{d\sigma_e}{d\Omega}(\theta) = |f(\theta)|^2 \quad (3.33)$$

Zerlegt man die Wellenfunktion in eine Reihe kugelförmiger Teilwellen mit der Phasenverschiebung δ_l gegenüber der ebenen Welle, so erhält man eine Gleichung für die Streuungsamplitude $f(\theta)$.

$$f(\theta) = \frac{1}{2ik} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) (e^{2i\delta_l} - 1) P_l(\cos \theta) \quad (3.34)$$

P_l sind hierbei Legendre-Polynome. Die Phasenverschiebung δ_l kann über das Lösen der Schrödinger- oder Diracgleichung für das entsprechende Potential ermittelt werden. In dieser Arbeit wird für die Berechnung des differentiellen Wirkungsquerschnitts der von Salvat et al. entwickelte ELSEPA-Code verwendet [47].

Über den Wirkungsquerschnitt $\sigma_e = \int_{4\pi} \frac{d\sigma_e}{d\Omega}(\theta) d\Omega$ lässt sich anschließend die elastische mittlere freie Weglänge λ_e (EMFP, engl. *elastic mean free path*) berechnen [46].

$$\lambda_e = \frac{1}{\rho_{at} \sigma_e} = \left(\rho_{at} \int_{4\pi} \frac{d\sigma_e}{d\Omega}(\theta) d\Omega \right)^{-1} \quad (3.35)$$

Dabei ist ρ_{at} die atomare Dichte des Materials. Diese lässt sich mithilfe der Avogadro-Konstanten N_A , der Dichte des Materials ρ und dessen molarer Masse M ermitteln.

$$\rho_{at} = \frac{\rho N_A}{M} \quad (3.36)$$

Abb. 3.9 zeigt einen exemplarischen Verlauf des differentiellen Wirkungsquerschnitts und des EMFP für verschiedene Elektronenenergien.

3.2.2.2 Inelastische Streuprozesse

Bei den inelastischen Streuprozessen ist die differenzielle inelastische inverse mittlere freie Weglänge $\frac{d\lambda_i^{-1}}{d(\Delta\varepsilon_T)}(\varepsilon, \Delta\varepsilon_T)$ (DIIMFP, engl. *differential inelastic inverse mean free path*) die relevante physikalische Größe. Diese ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron der Energie ε in einem Stoßprozess mit einem anderen Elektron die Energie $\Delta\varepsilon_T$ an letzteres abgibt [48]. Der DIIMFP lässt sich dabei aus der dielektrischen Funktion $\epsilon(q, \omega)$ des jeweiligen Materials berechnen [46].

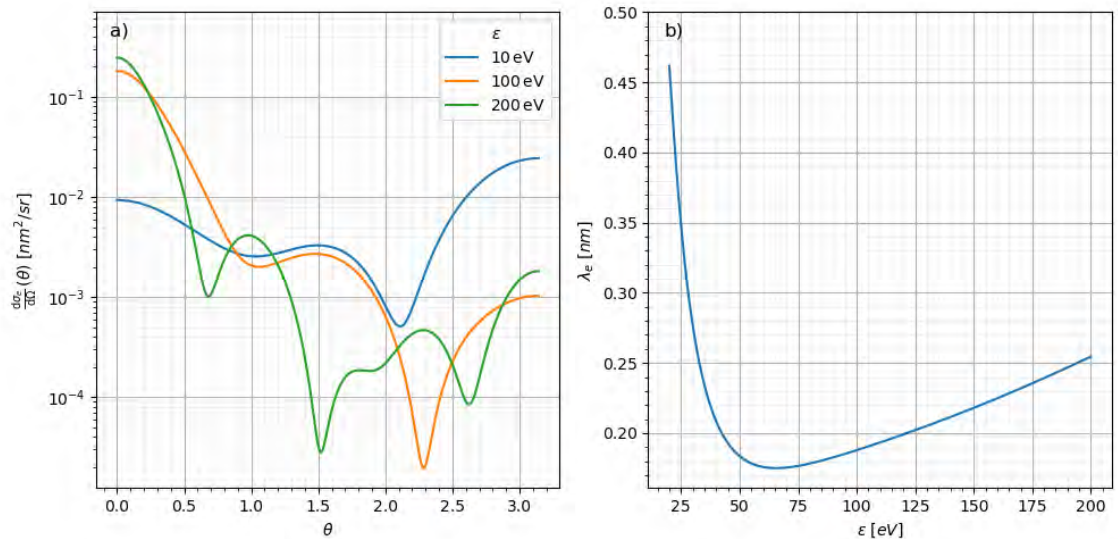


Abbildung 3.9: Differentieller Wirkungsquerschnitt für ausgewählte Elektronenenergien in Abhängigkeit des Kollisionswinkels in (a) und EMFP in Abhängigkeit der Elektronenenergie in (b) für Gold.

$$\frac{d\lambda_i^{-1}}{d(\Delta\varepsilon_T)}(\varepsilon, \Delta\varepsilon_T) = \frac{1}{\pi a_0 \varepsilon} \int_{q_-}^{q_+} \frac{1}{q} \operatorname{Im} \left[\frac{-1}{\epsilon(q, \Delta\varepsilon_T/\hbar)} \right] dq \quad (3.37)$$

Hierbei ist q der übertragene Impuls. Die Integrationsgrenzen q_{\pm} lassen sich mithilfe der Elektronenenergie ε und der übertragenen Energie $\Delta\varepsilon_T$ berechnen.

$$q_{\pm} = \sqrt{\frac{2m_e^*}{\hbar^2}} (\sqrt{\varepsilon} \pm \sqrt{\varepsilon - \Delta\varepsilon_T}) \quad (3.38)$$

Mittels Integration über alle möglichen Energieverluste des Elektrons erhält man die inelastische mittlere freie Weglänge λ_i (IMFP, engl. *inelastic mean free path*).

$$\lambda_i(\varepsilon) = \left(\int_0^{\varepsilon} \frac{d\lambda_i^{-1}}{d(\Delta\varepsilon_T)}(\varepsilon, \Delta\varepsilon_T) d\Delta\varepsilon_T \right)^{-1} \quad (3.39)$$

In Abb. 3.10 ist der DIIMFP und der IMFP für verschiedene Energiewerte exemplarisch für Gold dargestellt.

Die dielektrischen Funktion $\epsilon(q, \omega)$ wird nach dem Drude-Modell gebildet, welches in Kap. 2.1.1 bereits behandelt wurde. Dabei wird von einem freien Elektronengas und einer homogenen Ladungsträgerdichte ausgegangen, woraus folgende Energieverlustfunktion $\operatorname{Im} \left[\frac{-1}{\epsilon(q, \omega)} \right]$ folgt [49].

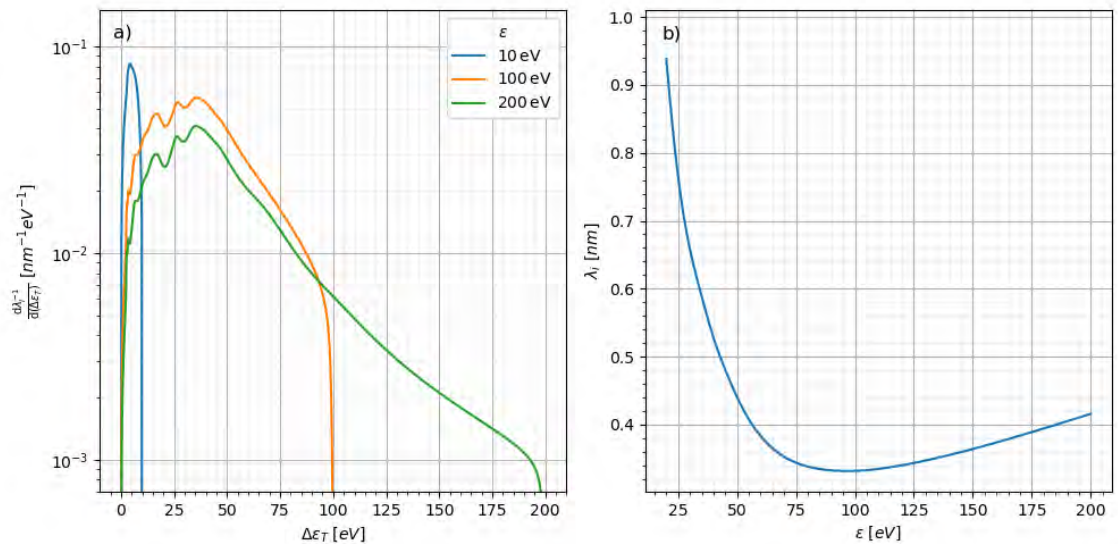


Abbildung 3.10: DIIMFP für ausgewählte Elektronenenergien in Abhängigkeit des Energieverlustes beim inelastischen Stoß in (a) und IMFP in Abhängigkeit der Elektronenenergie in (b) für Gold.

$$\text{Im} \left[\frac{-1}{\epsilon(q, \omega)} \right] = \frac{\omega \gamma \omega_p(0)^2}{(\omega^2 - \omega_p(q)^2)^2 + \omega^2 \gamma^2} \quad (3.40)$$

γ wird als Dämpfungskonstante bezeichnet und die Plasmafrequenz $\omega_p(0)$ kann aus der Elektronendichte N berechnet werden.

$$\omega_p(0) = \sqrt{\frac{Ne^2}{m_e^* \epsilon_0}} \quad (3.41)$$

Für reale Materialien mit inhomogener Ladungsträgerdichte hat es sich als zweckdienlich erwiesen, die Energieverlustfunktion als eine gewichtete Summe mehrerer Drude-Funktionen zu beschreiben. Jede dieser Summanden beschreibt dabei ein Teilvolumen mit konstanter Ladungsträgerdichte.

$$\text{Im} \left[\frac{-1}{\epsilon(q, \omega)} \right] = \sum_i A_i \frac{\omega \gamma_i \omega_i(0)^2}{(\omega^2 - \omega_i(q)^2)^2 + \omega^2 \gamma_i^2} \quad (3.42)$$

Die beiden Parameter γ_i und $\omega_i(0)$ können dabei realen Messdaten im optischen Limit $q \rightarrow 0$ entnommen werden. Die Abhängigkeit von ω_i von der Impulsübertragung q kann dabei über folgende Dispersionsgleichung ausgedrückt werden [50].

$$\omega_i(q) = \sqrt{\omega_i(0)^2 + \frac{2}{3} \epsilon_F q^2 + \frac{q^4}{4}} \quad (3.43)$$

Wie in Abb. 3.11 am Beispiel von Gold zu sehen, können die optischen Messdaten mithilfe dieser Methode sehr gut angenähert werden.

Die Materialdaten wurden hierbei von Ridzel et al. [45] für Gold und Silber und von Henke et al. [51] für Graphen übernommen. Bei letzterem wird die Energieverlustfunktion aus dem komplexen atomaren Streuungsfaktoren $\underline{f} = f_1 - i f_2$ berechnet [52].

$$\text{Im} \left[\frac{-1}{\epsilon(\omega)} \right] = \text{Im} \left[\frac{-1}{\left(1 - \frac{1}{2\pi} N r_e \lambda^2 \underline{f}(\omega)\right)^2} \right] \quad (3.44)$$

Dabei ist r_e der klassische Elektronenradius, λ die Wellenlänge und N die Anzahl an Atomen pro Volumen.

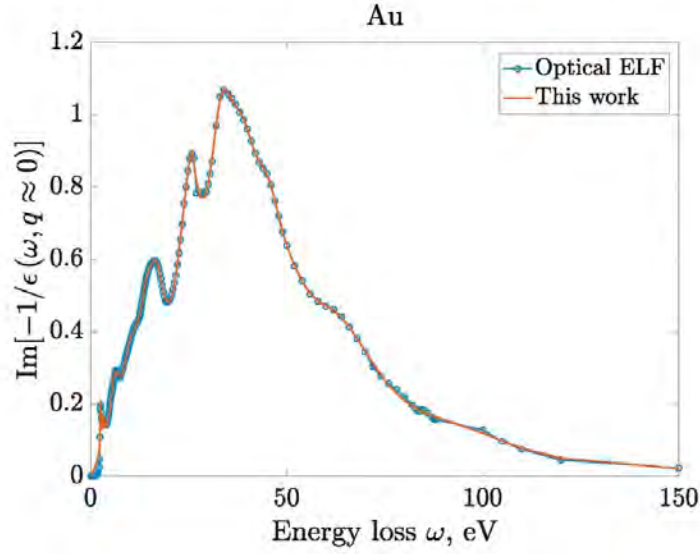


Abbildung 3.11: Approximation der Energieverlustfunktion mittels einer Summe mehrerer Drude-Funktionen und deren Vergleich mit Literaturdaten. Abbildung übernommen aus [45].

3.2.3 Emission der Photoelektronen

Bei der Emission der angeregten Elektronen aus dem Festkörper muss der Energieverlust $V_0 = \varepsilon_F + W$ aufgrund der Potentialbarriere an der Festkörper-Vakuum-Grenzschicht mit einbezogen werden [41]. Dies wird in Abb. 3.8 verdeutlicht. Hierfür sind die Radial- und Tangentialkomponenten des Geschwindigkeitsvektors $\vec{v}_{sr}^{(-)}$ bzw. $\vec{v}_{st}^{(-)}$ in Bezug auf den Einheitsnormalenvektor \vec{n} der Oberfläche kurz vor der Grenzschicht von Bedeutung.

$$\vec{v}_{sr}^{(-)} = (\vec{v}_s \cdot \vec{n}) \vec{n} \quad (3.45a)$$

$$\vec{v}_{st}^{(-)} = \vec{v}_s - \vec{v}_{sr}^{(-)} \quad (3.45b)$$

Aus diesen lassen sich die entsprechenden Geschwindigkeitskomponenten kurz nach der Grenzschicht $\vec{v}_{sr}^{(+)}$ bzw. $\vec{v}_{st}^{(+)}$ mithilfe der Energieerhaltung berechnen.

$$\vec{v}_{sr}^{(+)} = \sqrt{\frac{m_e^*}{m_e} - \frac{2V_0}{m_e |\vec{v}_{sr}^{(-)}|^2}} \vec{v}_{sr}^{(-)} \quad (3.46a)$$

$$\vec{v}_{st}^{(+)} = \sqrt{\frac{m_e^*}{m_e}} \vec{v}_{st}^{(-)} \quad (3.46b)$$

Die Radialkomponente $\vec{v}_{sr}^{(-)}$ bestimmt dabei, ob das Elektron energetisch in der Lage ist, die Potentialbarriere V_0 zu überwinden und den Festkörper zu verlassen. Klassisch betrachtet ergibt sich somit die in Gl. 3.47 dargestellte Transmissionsfunktion T in Abhängigkeit der radialen Energie $\varepsilon_{sr}^{(-)} = \frac{1}{2} m_e^* |\vec{v}_{sr}^{(-)}|^2$ [53].

$$T(\varepsilon_{sr}^{(-)}) = \begin{cases} 1, & \varepsilon_{sr}^{(-)} > V_0 \\ 0, & \text{sonst} \end{cases} \quad (3.47)$$

Betrachtet man den Prozess quantenmechanisch, so ergibt sich eine leicht veränderte Transmissionsfunktion, welche auch in dieser Arbeit verwendet wird [54].

$$T(\varepsilon_{sr}^{(-)}) = \begin{cases} \frac{4\sqrt{1-V_0/\varepsilon_{sr}^{(-)}}}{\left(1+\sqrt{1-V_0/\varepsilon_{sr}^{(-)}}\right)^2}, & \varepsilon_{sr}^{(-)} > V_0 \\ 0, & \text{sonst} \end{cases} \quad (3.48)$$

Somit besitzt ein Elektron auch mit ausreichend Energie eine bestimmte Wahrscheinlichkeit, in den Festkörper zurück reflektiert zu werden. Abb. 3.12 zeigt die beiden Transmissionsfunktionen im Vergleich zueinander.

Die Geschwindigkeiten der reflektierten Elektronen nach der Reflexion \vec{v}_s^* lassen sich mittels des Reflexionsgesetzes berechnen.

$$\vec{v}_s^* = \vec{v}_s^{(-)} - 2(\vec{v}_s^{(-)} \cdot \vec{n})\vec{n} \quad (3.49)$$

Das hier angewandte Modell setzt eine binäre Interaktion mit der Oberfläche voraus [45]. Somit muss das durch ein Atom belegte Volumen um ein Vielfaches größer sein als dasjenige, in welchem die Interaktionen der Elektronen stattfinden. Dies hat zur Folge, dass die Wellenlänge der Elektronen kleiner als die Distanz zwischen zwei Atomen sein muss, was für niederenergetische Elektronen nicht der Fall ist. Jedoch sind für die Simulation nur Elektronen relevant, welche den

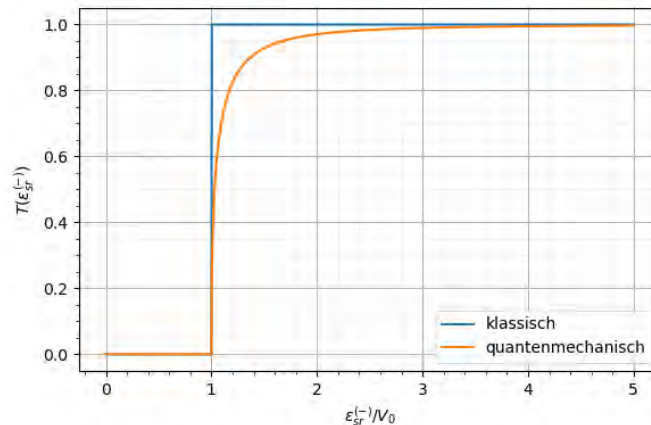


Abbildung 3.12: Vergleich der klassischen mit der quantenmechanischen Transmissionsfunktion beim Auftreffen eines Elektrons an der Oberfläche des Festkörpers.

Festkörper verlassen können. Diese müssen nach Gl. 3.48 eine Energie von mindestens V_0 haben, welche sich im Bereich von 15 eV bewegt. Somit ist die Wellenlänge der betrachteten Elektronen über die Potentialbarriere beschränkt, was die oben getroffene Annahme für den betrachteten Bereich gültig macht.

3.2.4 Programmiertechnische Umsetzung des Photoemissionsprozesses

In den vorangegangenen Unterkapiteln wurden die physikalischen Grundlagen des Photoemissionsprozesses erläutert. Hierbei wurden zunächst Formeln bzw. Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen für die Anregezeit, -position und -geschwindigkeit hergeleitet. Anschließend wurde der Transport der Elektronen im Festkörper näher charakterisiert. Dieser wird maßgeblich von elastischen und inelastischen Stoßprozessen beeinflusst. Abschließend wurde die Emission der Elektronen an der Festkörperoberfläche inklusive deren Transmissionsfunktion und resultierendem Energieverlust näher beleuchtet.

In diesem Kapitel soll die programmiertechnische Umsetzung der Simulation des Photoemissionsprozesses erläutert werden. Dabei werden die eben angeführten drei Teilschritte nacheinander abgearbeitet. Der Programmablauf ist dabei in Abb. 3.13 als Blockdiagramm dargestellt. Bei den Aktualisierungsvorgängen der physikalischen Größen wird im Folgenden die Größe nach der Aktualisierung mit einem " ^ " gekennzeichnet.

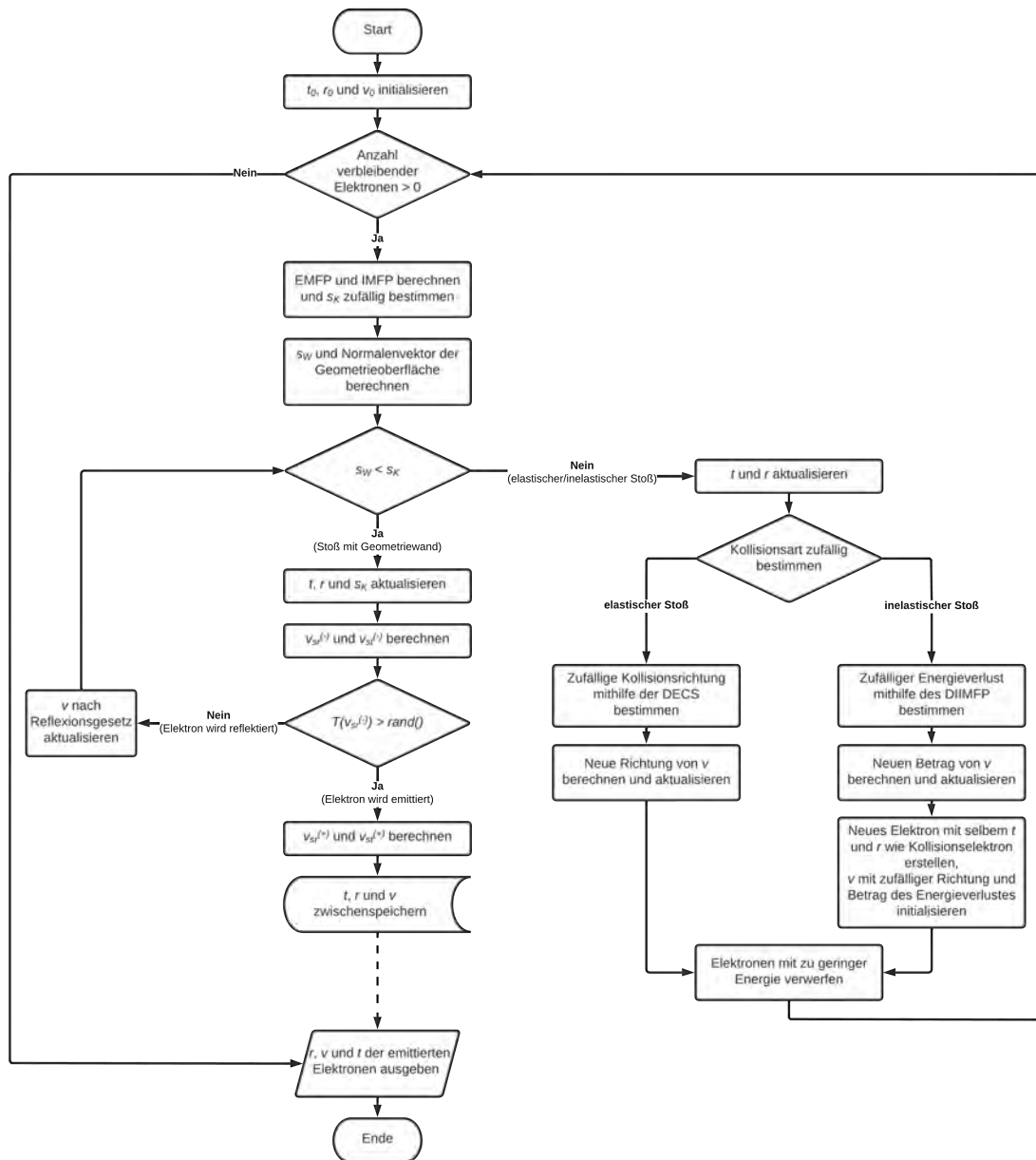


Abbildung 3.13: Blockdiagramm der programmiertechnischen Umsetzung des Photoemissionsprozesses

Zunächst werden N Startelektronen mit je einer Anregezeit t_e (Gl. 3.17), einer Anfangsposition \vec{r}_0 (Gl. 3.18 bzw. Gl. 3.19a/3.19b) und einer Anfangsgeschwindigkeit \vec{v}_0 (Gl. 3.30 und Code-Beispiel 3.2) erzeugt.

Anschließend wird in Abhängigkeit der Elektronenenergie $\varepsilon = \frac{1}{2} m_e^* \vec{v}^2$ der EMFP bzw. IMFP (Gl. 3.35 bzw. 3.39) bestimmt. Aus rechenzeittechnischen Gründen wurden diese Werte im Vorfeld in 1 eV bzw. 0.2 eV Schritten berechnet und quadratisch zwischen diesen interpoliert. Die gesamte mittlere freie Weglänge λ_t kann anschließend aus diesen beiden Weglängen berechnet werden [46].

$$\lambda_t = \frac{\lambda_e \lambda_i}{\lambda_e + \lambda_i} \quad (3.50)$$

Mithilfe der Inversionsmethode aus Abschnitt 3.2.1 können so zufällige Werte für den zurückgelegten Weg s_K bis zum nächsten Stoß erzeugt werden.

$$s_K = -\lambda_t \ln(rand()) \quad (3.51)$$

Da angenommen wird, dass sich Elektronen zwischen zwei Stößen geradlinig bewegen, kann der Weg s_W bis zur nächsten Kollision mit der Geometrieoberfläche analytisch berechnet werden. Zudem ist der Einheitsnormalenvektor \vec{n} der Geometrieoberfläche am Punkt der Kollision für spätere Berechnungen von Bedeutung. Die hierfür verwendete Funktion muss dabei je nach Geometrie angepasst werden.

Exemplarisch wird im Folgenden die Umsetzung für zylinder- und kugelförmige Geometrien betrachtet. Der Weg des Elektrons in Abhängigkeit einer Variable τ ist durch $\hat{\vec{r}} = \vec{r} + \tau \vec{v}$ gegeben, wobei die Bedingung $\tau \geq 0$ gilt. In der Simulationsumgebung wurde das Koordinatensystem immer so gewählt, dass der Mittelpunkt der Geometrie im Ursprung der xy-Ebene liegt und der tiefste Punkt sich bei $z = 0$ befindet. Dieses Koordinatensystem unterscheidet sich somit um einen Offset in z-Richtung von demjenigen in Meep.

Betrachtet wird zunächst ein Zylinder, dessen Mittelpunkt des Grundkreises mit dem Radius $r_{Zylinder}$ sich im Ursprung befindet und die Höhe $h_{Zylinder}$ besitzt. Geht man zunächst von einer unendlich hohen Mantelfläche aus, so lässt sich für diesen Fall der Kollisionszeitpunkt τ_M wie folgt bestimmen.

$$\begin{aligned}
 (r_x + \tau v_x)^2 + (r_y + \tau v_y)^2 - r_{Zylinder}^2 &= 0 \\
 \Rightarrow \tau_M = \frac{-b + \sqrt{b^2 - 4ac}}{2a} \quad \text{mit} \quad & \begin{aligned} a &= v_x^2 + v_y^2 \\ b &= 2(r_x v_x + r_y v_y) \\ c &= r_x^2 + r_y^2 - r_{Zylinder}^2 \end{aligned}
 \end{aligned} \tag{3.52}$$

Für den Zylinder mit endlicher Höhe muss zudem die räumliche Begrenzung aufgrund der Grund- und Deckfläche berücksichtigt werden.

$$\tau = \begin{cases} -\frac{r_z}{v_z}, & r_z + \tau_M v_z < 0 \\ \frac{h_{Zylinder} - r_z}{v_z}, & r_z + \tau_M v_z > h_{Zylinder} \\ \tau_M, & \text{sonst} \end{cases} \tag{3.53}$$

Mithilfe von τ kann nun die freie Weglänge s_W und der Einheitsnormalenvektor \vec{n} berechnet werden.

$$s_W = |\tau \vec{v}| \tag{3.54a}$$

$$\vec{n} = \begin{cases} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix}, & r_z + \tau_M v_z < 0 \\ \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, & r_z + \tau_M v_z > h_{Zylinder} \\ \begin{pmatrix} (r_x + \tau v_x)/r_{Zylinder} \\ (r_y + \tau v_y)/r_{Zylinder} \\ 0 \end{pmatrix}, & \text{sonst} \end{cases} \tag{3.54b}$$

Für eine Kugel mit dem Radius r_{Kugel} und dem Mittelpunkt $\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ r_{Kugel} \end{pmatrix}$ erfüllen alle Punkte der Oberfläche die Bedingung $x^2 + y^2 + (z - r_{Kugel})^2 = r_{Kugel}^2$. In diesen Term lässt sich die Bewegungsgleichung des Elektrons einsetzen und nach τ auflösen.

$$(r_x + \tau v_x)^2 + (r_y + \tau v_y)^2 + (r_z + \tau v_z)^2 - 2(r_z + \tau v_z)r_{Kugel} = 0$$

$$\Rightarrow \tau = \frac{-b + \sqrt{b^2 - 4ac}}{2a} \quad \text{mit} \quad \begin{aligned} a &= v_x^2 + v_y^2 + v_z^2 \\ b &= 2(r_x v_x + r_y v_y + r_z v_z - r_{Kugel} v_z) \\ c &= r_x^2 + r_y^2 + r_z^2 - 2r_z r_{Kugel} \end{aligned} \quad (3.55)$$

Somit lassen sich erneut s_W und \vec{n} berechnen.

$$s_W = |\tau \vec{v}| \quad (3.56a)$$

$$\vec{n} = \frac{\vec{r} + \tau \vec{v}}{r_{Kugel}} - \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (3.56b)$$

Für den Fall $s_W < s_K$, d.h. die Elektronen kollidieren ohne vorherigen elastischen bzw. inelastischen Stoß mit der Wand, wird zunächst diese Wandkollision simuliert. Hierzu wird die Zeit des Elektrons t und die Position r aktualisiert. Die Geschwindigkeit bleibt bis zur Kollision unverändert. Zudem muss ebenfalls der Weg bis zum nächsten elastischen bzw. inelastischen Stoß s_K um die eben zurückgelegte Strecke s_W angepasst werden.

$$\hat{t} = t + \frac{s_W}{|\vec{v}|} \quad (3.57a)$$

$$\hat{\vec{r}} = \vec{r} + s_W \frac{\vec{v}}{|\vec{v}|} \quad (3.57b)$$

$$\hat{s}_K = s_K - s_W \quad (3.57c)$$

Nach den Gleichungen 3.45a und 3.45b wird nun die Radial- und Tangentialkomponente der Geschwindigkeit $\vec{v}_{sr}^{(-)}$ und $\vec{v}_{st}^{(-)}$ bestimmt. Nach Gleichung 3.48 kann mithilfe der Radialenergie $\varepsilon_{sr}^{(-)} = \frac{1}{2} m_e^* \vec{v}_{sr}^{(-)2}$ die Transmissionswahrscheinlichkeit T ermittelt werden. Ist diese größer als eine zufällige, gleichverteilte Zahl im Intervall $[0, 1]$, so verlässt das Elektron den Festkörper und wird emittiert. Dabei muss die neue Geschwindigkeit $\hat{\vec{v}} = \vec{v}_{sr}^{(+)} + \vec{v}_{st}^{(+)}$ mithilfe von Gleichungen 3.46a und 3.46b ermittelt werden. Dieser Wert wird zusammen mit der aktuellen Zeit t und Position \vec{r} gespeichert. Elektronen, welche den Festkörper nicht verlassen konnten, werden an dessen Oberfläche reflektiert. Dabei muss die Richtung der

Geschwindigkeit nach Gl. 3.49 angepasst werden. Dieser Vorgang wird so lange wiederholt, bis für sämtliche Elektronen die oben genannte Bedingung nicht mehr erfüllt ist.

Im nächsten Schritt werden erneut die Zeit t und Position r der Elektronen aktualisiert, sodass diese den Zeitpunkt der elastischen bzw. inelastischen Kollision widerspiegeln.

$$\hat{t} = t + \frac{s_K}{|\vec{v}|} \quad (3.58a)$$

$$\hat{\vec{r}} = \vec{r} + s_K \frac{\vec{v}}{|\vec{v}|} \quad (3.58b)$$

Anschließend wird die Art der Kollision nach der Wahrscheinlichkeit für einen elastischen Stoß $p_e = \lambda_e^{-1}/(\lambda_e^{-1} + \lambda_i^{-1})$ oder für einen inelastischen Stoß $p_i = \lambda_i^{-1}/(\lambda_e^{-1} + \lambda_i^{-1})$ bestimmt [46].

Liegt ein elastischer Stoß vor, so bleibt der Betrag der Geschwindigkeit konstant. Die Richtung nach dem Stoß ergibt sich aus dem Polar- θ_0 und Azimutwinkel φ_0 des Geschwindigkeitsvektors vor dem Streuprozess und den zufällig gewählten Streuwinkeln θ_k bzw. φ_k . Wie in Kap. 3.2.2.1 beschrieben, kann der Azimutwinkel φ_k aufgrund des radialsymmetrischen Feldes des Atoms als gleichverteilt im Intervall $[0, 2\pi]$ angenommen werden. Der Polarwinkel wird hingegen nach dem differentiellen Wirkungsquerschnitt $\frac{d\sigma_e}{d\Omega}(\theta)$ gewählt. Dieser wird so normiert, dass eine Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion $\rho_{DECS}(\theta)$ entsteht. Anschließend kann mithilfe der Inversionsmethode aus Abschnitt 3.2.1 ein zufälliger Polarwinkel gewählt werden.

$$\rho_{DECS}(\theta) = \frac{\frac{d\sigma_e}{d\Omega}(\theta)}{\int_0^\pi \frac{d\sigma_e}{d\Omega}(\tilde{\theta}) d\tilde{\theta}} \quad (3.59)$$

Aus diesen vier Winkeln kann nach folgender Formel der Geschwindigkeitsvektor nach dem Stoß berechnet werden [46].

$$\hat{\vec{v}} = |\vec{v}| \left[\begin{pmatrix} \cos \varphi_0 \cos \theta_0 & -\sin \varphi_0 & \cos \varphi_0 \sin \theta_0 \\ \sin \varphi_0 \cos \theta_0 & \cos \varphi_0 & \sin \varphi_0 \sin \theta_0 \\ -\sin \theta_0 & 0 & \cos \theta_0 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} \sin \theta_k \cos \varphi_k \\ \sin \theta_k \sin \varphi_k \\ \cos \theta_k \end{pmatrix} \right] \quad (3.60)$$

Bei einem inelastischen Stoß bleibt die Richtung der Geschwindigkeit konstant. Der Betrag hingegen wird entsprechend des Energieverlustes $\Delta\varepsilon_T$ in Bezug auf die ursprüngliche Energie $\varepsilon = \frac{1}{2} m_e^* \vec{v}^2$ des Elektrons vor der Kollision aktualisiert.

$$\hat{\vec{v}} = \sqrt{\frac{2(\varepsilon - \Delta\varepsilon_T)}{m_e^*}} \frac{\vec{v}}{|\vec{v}|} \quad (3.61)$$

Der Energieverlust $\Delta\varepsilon_T$ wird anhand des DIIMFP $\frac{d\lambda_i^{-1}}{d(\Delta\varepsilon_T)}(\varepsilon, \Delta\varepsilon_T)$ (Gl. 3.37) zufällig generiert. Hierzu wird analog zu Gl. 3.59 eine Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion $\rho_{DIIMFP}(\Delta\varepsilon_T)$ bei vorgegebener Elektronenenergie ε erzeugt und mittels der Inversionsmethode ein zufälliger Wert bestimmt.

$$\rho_{DIIMFP}(\Delta\varepsilon_T) = \frac{\frac{d\lambda_i^{-1}}{d(\Delta\varepsilon_T)}(\varepsilon, \Delta\varepsilon_T)}{\int_0^\varepsilon \frac{d\lambda_i^{-1}}{d(\Delta\varepsilon_T)}(\varepsilon, \Delta\tilde{\varepsilon}_T) d\tilde{\varepsilon}_T} \quad (3.62)$$

Zusätzlich wird ein neues Photoelektron der Energie $\varepsilon = \varepsilon_{CB} + \Delta\varepsilon_T$ gebildet. Die Energie des Sekundärelektrons vor dem Stoß ε_{CB} wird zufällig nach der Zustandsdichte der Leitungsbandelektronen (Gl. 3.22) ausgewählt. Da sich nur ein verschwindend geringer Bruchteil der Leitungsbandelektronen im angeregten Zustand befindet, können Stöße mit diesen vernachlässigt werden. Die Richtung wird hierbei als isotrop angenommen [45].

$$\vec{v} = \begin{pmatrix} v \sin(\theta) \cos(\varphi) \\ v \sin(\theta) \sin(\varphi) \\ v \cos(\theta) \end{pmatrix} \quad \text{mit} \quad \begin{aligned} v &= \sqrt{\frac{2(\varepsilon_{CB} + \Delta\varepsilon_T)}{m_e^*}} \\ \theta &= \arccos(2 \cdot \text{rand}() - 1) \\ \varphi &= 2\pi \cdot \text{rand}() \end{aligned} \quad (3.63)$$

Die Zeit t und Position \vec{r} des neuen Elektrons werden von dessen Stoßpartner übernommen.

Abschließend werden Elektronen der Energie $\varepsilon < V_0$ verworfen, da diese nach Gl. 3.48 den Festkörper nicht mehr verlassen können und somit für die Erzeugung der Photoelektronen ohne Bedeutung sind. Dieser gesamte Prozess wird so lange wiederholt, bis alle Elektronen den Festkörper verlassen haben oder deren Energie zu gering ist.

Ein exemplarisches Photoelektronenspektrum ist in Abb. 3.14 dargestellt. Hierbei erkennt man, dass die Anzahl an langsamen Sekundärelektronen deutlich hö-

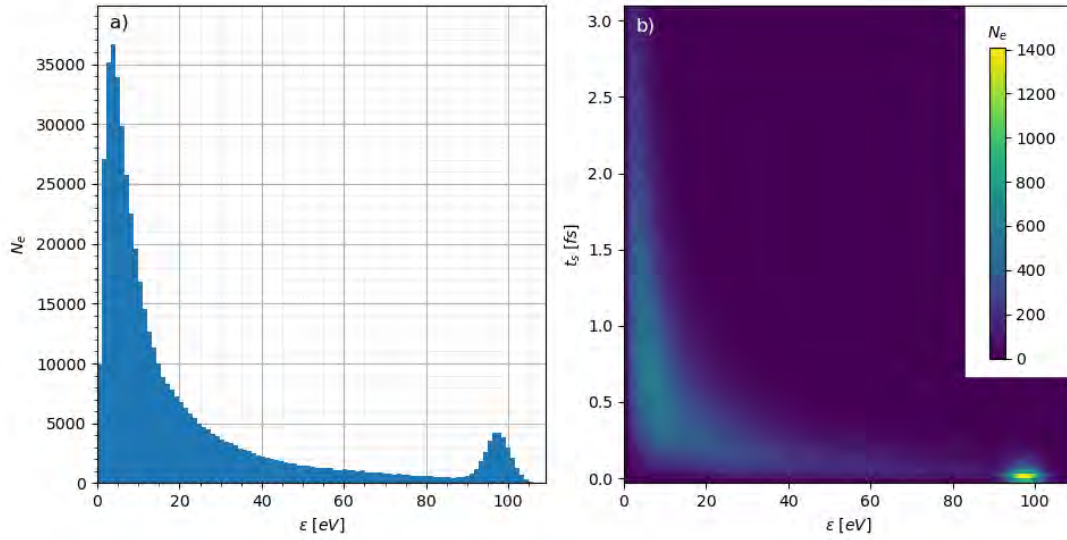


Abbildung 3.14: Exemplarisches Photoemissionsspektrum der Simulationsumgebung. Darstellung der Anzahl an emittierten Elektronen in Abhängigkeit ihrer kinetischen Energie in (a) und in Abhängigkeit ihrer kinetischen Energie und Austrittszeit in (b) bei insgesamt 1 000 000 angeregten Elektronen.

her ist als die Anzahl der Primärelektronen. Zudem ist der Emissionszeitpunkt der Primärelektronen im Bereich weniger hundertstel einer Femtosekunde. Sekundärelektronen hingegen treten noch einige Femtosekunden nach deren Anregung aus dem Festkörper aus. Betrachtet man die Gesamtzahl der angeregten Elektronen, die in Abb. 3.14 bei 1 000 000 liegt, so werden inklusive der Sekundärelektronen nur etwa die Hälfte von diesen emittiert. Die übrigen Elektronen konnten aufgrund ihrer zu geringen Energie nach einigen Stößen den Festkörper nicht verlassen.

3.3 Lösung der Bewegungsgleichung der Photoelektronen

Um die finale Elektronenverteilung im Orts- und Impulsraum analysieren zu können, muss abschließend für die erzeugten Photoelektronen deren Bewegungsgleichung gelöst werden. Hierfür wird ein klassisches Modell verwendet, bei welchem die Elektronen als Teilchen betrachtet werden. Auf diese wirkt die durch das elektromagnetische Feld hervorgerufenen Lorentzkraft \vec{F}_L .

$$\vec{F}_L = q(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (3.64)$$

Dabei beschreibt \vec{E} die elektrische Feldstärke und \vec{B} die magnetische Flussdichte. Aus Gl. 3.64 ergibt sich somit eine Differentialgleichung 2. Ordnung für den Ortsvektor \vec{r} eines geladenen Teilchens mit der Ladung q und der Masse m .

$$\ddot{\vec{r}} = \frac{q}{m} \left(\vec{E}(t, \vec{r}) + \dot{\vec{r}} \times \vec{B}(t, \vec{r}) \right) \quad (3.65)$$

Der Simulationsbereich kann in zwei Teile unterteilt werden. Zum einen in das Nahfeld, in welchem eine Superposition des plasmonischen Feldes und des elektromagnetischen Feldes des Laserpulses besteht. Die Berechnung erfolgt hier, wie in Kap. 3.1 beschrieben, numerisch mithilfe des Simulationspackages Meep. Zum anderen in das Fernfeld, in welchem das plasmonische Feld nahezu komplett abgeklungen ist und somit nur noch das elektromagnetische Feld des Laserpulses vorliegt.

3.3.1 Numerische Lösung im Nahfeld

Im Nahfeld wird die Bewegungsgleichung der Elektronen numerisch gelöst. Hierzu wird ein Runge-Kutta-Nyström-Verfahren 4. Ordnung verwendet [55]. Dieses Verfahren wurde speziell für Differentialgleichung 2. Ordnung entwickelt und ist, wie der Name bereits vermuten lässt, eine Erweiterung des Runge-Kutta-Verfahrens. Differentialgleichungen der Form

$$\ddot{\vec{r}} = f(t, \vec{r}, \dot{\vec{r}}) \quad (3.66)$$

mit den Anfangswerten $\vec{r}(t_0) = \vec{r}_0$ und $\dot{\vec{r}}(t_0) = \vec{v}_0$ lassen sich nach dieser Methode numerisch wie folgt lösen:

$$\vec{f}_{jk} = f \left(t_k + \alpha_j \Delta t, \vec{r}_k + \alpha_j \Delta t \dot{\vec{r}}_k + \Delta t^2 \sum_{i=1}^4 \bar{\beta}_{ji} \vec{f}_{ik}, \dot{\vec{r}}_k + \Delta t \sum_{i=1}^4 \beta_{ji} \vec{f}_{ik} \right) \quad (3.67a)$$

$$\vec{r}_{k+1} = \vec{r}_k + \Delta t \dot{\vec{r}}_k + \Delta t^2 \sum_{j=1}^4 \bar{\gamma}_j \vec{f}_{jk} \quad (3.67b)$$

$$\dot{\vec{r}}_{k+1} = \dot{\vec{r}}_k + \Delta t \sum_{j=1}^4 \gamma_j \vec{f}_{jk} \quad (3.67c)$$

Die Koeffizienten $\bar{\beta}_{ij}$ und $\bar{\gamma}_i$ können mithilfe von β_{ij} und γ_i berechnet werden. Letztere Koeffizienten sind in dieser Arbeit diejenigen des klassischen Runge-Kutta-Verfahrens (RK4), wie in Tab. 3.4 zu sehen.

$$\bar{\beta}_{j\ell} := \sum_{k=1}^4 \beta_{jk} \beta_{k\ell} \quad (3.68a)$$

$$\bar{\gamma}_j := \sum_{k=1}^4 \gamma_k \beta_{kj} \quad (3.68b)$$

Die Funktion $f(t, \vec{r}, \dot{\vec{r}})$ entspricht dem Term für die Beschleunigung aufgrund der Lorentzkraft.

$$f(t, \vec{r}, \dot{\vec{r}}) = \frac{q}{m} \left(\vec{E}(t, \vec{r}) + \dot{\vec{r}} \times \vec{B}(t, \vec{r}) \right) \quad (3.69)$$

Um diese Funktion an allen möglichen Ortsvektoren \vec{r} und zu allen möglichen Zeitpunkten t im Nahfeld auswerten zu können, müssen die elektrischen und magnetischen Felder sowohl im Raum als auch in der Zeit interpoliert werden. Dies ist aufgrund der Diskretisierung des Raums und der Zeit bei numerischen Simulationen erforderlich. Hierfür wurde ein linearer 4D-Interpolationsalgorithmus gewählt. Dieser wird in Anhang A näher beschrieben. Die programmiertechnische Umsetzung des Runge-Kutta-Nyström-Verfahrens findet sich in Code-Beispiel 3.3 wieder.

3.3.2 Analytische Lösung im Fernfeld

Im Bereich des Fernfeldes lässt sich die Bewegungsgleichung analytisch lösen. Auf Grundlage der geringen räumlichen Abmessungen der Nanostrukturen, der im Vergleich dazu großen Wellenlänge und dem großen Fokusbereich des

Tabelle 3.4: Butcher-Tableau des verwendeten Runge-Kutta-Nyström-Verfahrens.

α_j	$\bar{\beta}_{j\ell}$				$\beta_{j\ell}$			
	0	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	1	$\frac{1}{2}$	0	$\frac{1}{2}$	1
	$\frac{1}{6}$	$\frac{1}{6}$	$\frac{1}{6}$	0	$\frac{1}{6}$	$\frac{2}{6}$	$\frac{2}{6}$	$\frac{1}{6}$
				$\bar{\gamma}_j$			γ_j	

Programmcod 3.3: Programmiertechnische Umsetzung des Runge-Kutta-Nyström-Verfahrens 4. Ordnung.

```
def RKN4(t, dt, r, v, f):  
    '''  
        Berechnung des neuen Positions- und Geschwindig-  
        keitsvektors von N Elektronen vom Zeitpunkt k zum  
        Zeitpunkt k+1 nach dem RKN-Verfahren.  
  
        Parameters  
        -----  
        t : ndarray(dtype=float , shape=(N, ))  
        Zeitpunkte der Elektronen zum Zeitpunkt k.  
        dt : ndarray(dtype=float , shape=(N, ))  
        Zeitdifferenzen der Zeitpunkte k und k+1.  
        r : ndarray(dtype=float , shape=(N, 3))  
        Positionsvektoren zum Zeitpunkt k.  
        v : ndarray(dtype=float , shape=(N, 3))  
        Geschwindigkeitsvektoren zum Zeitpunkt k.  
        f : function  
        Funktion mit den Parametern (t, r, v), welche die  
        Beschleunigung aufgrund der Lorentzkraft berechnet.  
  
        Returns  
        -----  
        r : ndarray(dtype=float , shape=(N, 3))  
        Positionsvektoren zum Zeitpunkt k+1.  
        v : ndarray(dtype=float , shape=(N, 3))  
        Geschwindigkeitsvektoren zum Zeitpunkt k+1.  
    '''  
    f1 = f(t,  
           r,  
           v)  
    f2 = f(t + 1/2 * dt,  
           r + 1/2 * dt * v + 1/8 * dt**2 * f1,  
           v + 1/2 * dt * f1)  
    f3 = f(t + 1/2 * dt,  
           r + 1/2 * dt * v + 1/8 * dt**2 * f1,  
           v + 1/2 * dt * f2)  
    f4 = f(t + dt,  
           r + dt * v + 1/2 * dt**2 * f3,  
           v + dt * f3)  
    r += dt * v + dt**2 * 1/6 * (f1 + f2 + f3)  
    v += 1/6 * dt * (f1 + 2*f2 + 2*f3 + f4)  
    return r, v
```

Lasers kann das elektrische bzw. magnetische Feld als räumlich konstant angesehen werden. Zudem besitzt das elektrische bzw. magnetische Feld aufgrund der linearen Polarisation des Laserstrahls lediglich eine x- bzw. y-Komponente.

$$\vec{E}(t, \vec{r}) = \vec{E}(t) = \begin{pmatrix} E_x(t) \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.70)$$

$$\vec{B}(t, \vec{r}) = \vec{B}(t) = \begin{pmatrix} 0 \\ B_y(t) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.71)$$

Setzt man Gl. 3.70 und 3.71 in die Differentialgleichung 3.65 ein, so kann diese infolge der fehlenden Ortsabhängigkeit zu einer Differentialgleichung 1. Ordnung vereinfacht werden.

$$\dot{\vec{v}} = \frac{q}{m} \begin{pmatrix} 0 & 0 & -B_y \\ 0 & 0 & 0 \\ B_y & 0 & 0 \end{pmatrix} \vec{v} + \frac{q}{m} \begin{pmatrix} E_x \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.72)$$

Die Lösung der y-Komponente $\dot{v}_y = 0$ ist hierbei trivial. Daher wird diese Komponente zunächst nicht weiter betrachtet und am Ende der Berechnungen wieder hinzugefügt. Somit ergibt sich folgendes System gekoppelter Differentialgleichungen, welches nachfolgend gelöst wird.

$$\begin{pmatrix} \dot{v}_x \\ \dot{v}_z \end{pmatrix} = \frac{q}{m} \begin{pmatrix} 0 & -B_y \\ B_y & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} v_x \\ v_z \end{pmatrix} + \frac{q}{m} \begin{pmatrix} E_x \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.73)$$

3.3.2.1 Homogene Lösung der Differentialgleichung

Zunächst wird die homogene Lösung der Differentialgleichung ermittelt.

$$\begin{pmatrix} \dot{v}_x \\ \dot{v}_z \end{pmatrix} = \frac{q}{m} \begin{pmatrix} 0 & -B_y \\ B_y & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} v_x \\ v_z \end{pmatrix} \quad (3.74)$$

Transformiert man diese Gleichung in Polarkoordinaten mittels der Substitutionen $v_x = v \cos(\varphi)$ und $v_z = v \sin(\varphi)$ und formt diese dann entsprechend um, so erhält man ein neues System von Differentialgleichungen.

$$\begin{aligned} \dot{v} \cos(\varphi) - v \sin(\varphi) \dot{\varphi} &= -\frac{q}{m} B_y v \sin(\varphi) \\ \dot{v} \cos(\varphi) - v \sin(\varphi) \dot{\varphi} &= -\frac{q}{m} B_y v \sin(\varphi) \end{aligned} \Rightarrow \begin{aligned} \dot{v} &= 0 \\ \dot{\varphi} &= \frac{q}{m} B_y \end{aligned} \quad (3.75)$$

Diese Differentialgleichungen sind voneinander entkoppelt und können somit einzeln gelöst werden.

$$v = C_1 \quad (3.76a)$$

$$\varphi = \frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau + C_2 \quad (3.76b)$$

Mittels der Rücktransformationen $v = \sqrt{v_x^2 + v_z^2}$ und $\cos(\varphi) = \frac{v_x}{\sqrt{v_x^2 + v_z^2}}$ erhält man die Ausdrücke in kartesischen Koordinaten.

$$v_x = C_1 \cos \left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau + C_2 \right) \quad (3.77a)$$

$$v_z = C_1 \sin \left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau + C_2 \right) \quad (3.77b)$$

Mithilfe der Additionstheoreme für \sin und \cos lassen sich die Gleichungen 3.77a und 3.77b umformen, sodass die homogene Lösung in vektorieller Schreibweise ausgedrückt werden kann.

$$v_x = C_1 \left[\cos(C_2) \cos \left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau \right) - \sin(C_2) \sin \left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau \right) \right] \quad (3.78a)$$

$$v_z = C_1 \left[\sin(C_2) \cos \left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau \right) + \cos(C_2) \sin \left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau \right) \right] \quad (3.78b)$$

Hierfür werden durch Substitution von $\tilde{C}_1 = C_1 \cos(C_2)$ und $\tilde{C}_2 = C_1 \sin(C_2)$ zwei neue Konstanten eingeführt.

$$v_x = \tilde{C}_1 \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) - \tilde{C}_2 \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \quad (3.79a)$$

$$v_z = \tilde{C}_1 \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) + \tilde{C}_2 \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \quad (3.79b)$$

Aus diesen Gleichungen kann die homogene Lösung des Differentialgleichungssystems in vektorieller Schreibweise gebildet werden.

$$\begin{pmatrix} v_x \\ v_z \end{pmatrix}_h = \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) & -\sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \\ \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) & \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{C}_1 \\ \tilde{C}_2 \end{pmatrix} \quad (3.80)$$

3.3.2.2 Inhomogene Lösung der Differentialgleichung

Das inhomogene Differentialgleichungssystem wird nun mittels Variation der Konstanten gelöst. Hierzu wird der Konstantenvektor $\vec{\tilde{C}}$ der homogenen Lösung zu einer zeitabhängigen Funktion $\vec{\tilde{C}}(t)$.

$$\begin{pmatrix} v_x \\ v_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) & -\sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \\ \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) & \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{C}_1(t) \\ \tilde{C}_2(t) \end{pmatrix} \quad (3.81)$$

Setzt man diesen nun in die ursprüngliche Differentialgleichung 3.73 ein, so erhält man nach einigen Umformungen folgende Beziehung:

$$\begin{pmatrix} \frac{q}{m} E_x(t) \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) & -\sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \\ \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) & \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \dot{\tilde{C}}_1(t) \\ \dot{\tilde{C}}_2(t) \end{pmatrix} \quad (3.82)$$

Aus Gl. 3.82 lassen sich mittels Integration die Funktionen $\tilde{C}_1(t)$ und $\tilde{C}_2(t)$ bestimmen.

$$\begin{aligned}
\begin{pmatrix} \tilde{C}_1 \\ \tilde{C}_2 \end{pmatrix} &= \int_{t_0}^t \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) & -\sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) \\ \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) & \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} \frac{q}{m} E_x(\tau) \\ 0 \end{pmatrix} d\tau \\
&+ \begin{pmatrix} C_1^* \\ C_2^* \end{pmatrix} \\
&= \int_{t_0}^t \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) & \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) \\ -\sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) & \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{q}{m} E_x(\tau) \\ 0 \end{pmatrix} d\tau \\
&+ \begin{pmatrix} C_1^* \\ C_2^* \end{pmatrix}
\end{aligned} \tag{3.83}$$

Dieses Gleichungssystem der Konstanten kann nun in die homogene Lösung (Gl. 3.80) eingesetzt werden.

$$\begin{aligned}
v_x &= \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \left[C_1^* + \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) d\tau \right] \\
&- \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \left[C_2^* - \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) d\tau \right]
\end{aligned} \tag{3.84a}$$

$$\begin{aligned}
v_z &= \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \left[C_1^* + \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) d\tau \right] \\
&+ \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \left[C_2^* - \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) d\tau \right]
\end{aligned} \tag{3.84b}$$

Abschließend können die Konstanten C_1^* und C_2^* mithilfe der Anfangsbedingung $t = t_0$ bestimmt werden.

$$v_x(t_0) = v_{x0} = C_1^* \tag{3.85a}$$

$$v_z(t_0) = v_{z0} = C_2^* \tag{3.85b}$$

Setzt man diese in Gl. 3.84a und 3.84b ein und fügt die triviale Lösung der y-Komponente hinzu, erhält man abschließend folgende allgemeine Lösung der Differentialgleichung:

$$v_x = \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \left[v_{x0} + \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) d\tau \right] \\ - \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \left[v_{z0} - \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) d\tau \right] \quad (3.86a)$$

$$v_y = v_{y0} \quad (3.86b)$$

$$v_z = \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \left[v_{x0} + \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) d\tau \right] \\ + \cos\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau\right) \left[v_{z0} - \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \sin\left(\frac{q}{m} \int_{t_0}^{\tau} B_y(\tilde{\tau}) d\tilde{\tau}\right) d\tau \right] \quad (3.86c)$$

Der Ortsvektor \vec{r} lässt sich aus Gl. 3.86a, 3.86b und 3.86c mittels Integration der Geschwindigkeiten über die Zeit berechnen.

$$\vec{r} = \begin{pmatrix} r_{x0} \\ r_{y0} \\ r_{z0} \end{pmatrix} + \int_{t_0}^t \begin{pmatrix} v_x(\tau) \\ v_y(\tau) \\ v_z(\tau) \end{pmatrix} d\tau = \vec{r}_0 + \int_{t_0}^t \vec{v}(\tau) d\tau \quad (3.87)$$

3.3.2.3 Numerische Berechnung der Integralfunktionen

Da die numerische Berechnung von Integralfunktionen rechen- und somit auch zeitintensiv ist, wird im Folgenden Gl. 3.87 so umgestellt, dass lediglich eine Hand voll Integralfunktionen benötigt werden. Hierbei wird die Additivität von Integralen mit gleichem Integranden ausgenutzt. Bei den aktuellen Gl. 3.86a, 3.86b und 3.86c sowie Gl. 3.87 müssten diese für jede Anfangszeit t_0 neu berechnet werden.

$$I_B(t) := \frac{q}{m} \int_0^t B_y(\tau) d\tau \quad \Rightarrow \quad \frac{q}{m} \int_{t_0}^t B_y(\tau) d\tau = I_B(t) - I_B(t_0) \quad (3.88)$$

Mithilfe dieser Definition und der Additionstheoreme lassen sich auch die verbleibenden Integranden in Gl. 3.86a bzw. 3.86c unabhängig von t_0 formulieren.

$$\begin{aligned}
& \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \cos(I_B(\tau) - I_B(t_0)) \, d\tau \\
&= \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) [\cos(I_B(t_0)) \cos(I_B(\tau)) \\
&\quad + \sin(I_B(t_0)) \sin(I_B(\tau))] \, d\tau \tag{3.89} \\
&= \cos(I_B(t_0)) \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \cos(I_B(\tau)) \, d\tau \\
&\quad + \sin(I_B(t_0)) \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \sin(I_B(\tau)) \, d\tau
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \sin(I_B(\tau) - I_B(t_0)) \, d\tau \\
&= \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) [\cos(I_B(t_0)) \sin(I_B(\tau)) \\
&\quad - \sin(I_B(t_0)) \cos(I_B(\tau))] \, d\tau \tag{3.90} \\
&= \cos(I_B(t_0)) \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \sin(I_B(\tau)) \, d\tau \\
&\quad - \sin(I_B(t_0)) \int_{t_0}^t \frac{q}{m} E_x(\tau) \cos(I_B(\tau)) \, d\tau
\end{aligned}$$

Somit können zwei neue Integralfunktionen wie folgt definiert werden:

$$I_{E \cos}(t) := \frac{q}{m} \int_0^t E_x(\tau) \cos(I_B(\tau)) \, d\tau \tag{3.91}$$

$$I_{E \sin}(t) := \frac{q}{m} \int_0^t E_x(\tau) \sin(I_B(\tau)) \, d\tau \tag{3.92}$$

Diese Definitionen können aufgrund der Additivität von Integralen analog zu Gl. 3.88 in die Gleichungen der Geschwindigkeiten (3.86a, 3.86b und 3.86c) eingesetzt werden.

$$\begin{aligned}
 v_x = & \cos(I_B(t) - I_B(t_0)) [v_{x0} + \cos(I_B(t_0)) (I_{E \cos}(t) - I_{E \cos}(t_0)) \\
 & + \sin(I_B(t_0)) (I_{E \sin}(t) - I_{E \sin}(t_0))] \\
 & - \sin(I_B(t) - I_B(t_0)) [v_{z0} - \cos(I_B(t_0)) (I_{E \sin}(t) - I_{E \sin}(t_0)) \\
 & + \sin(I_B(t_0)) (I_{E \cos}(t) - I_{E \cos}(t_0))]
 \end{aligned} \tag{3.93a}$$

$$v_y = v_{y0} \tag{3.93b}$$

$$\begin{aligned}
 v_z = & \sin(I_B(t) - I_B(t_0)) [v_{x0} + \cos(I_B(t_0)) (I_{E \cos}(t) - I_{E \cos}(t_0)) \\
 & + \sin(I_B(t_0)) (I_{E \sin}(t) - I_{E \sin}(t_0))] \\
 & + \cos(I_B(t) - I_B(t_0)) [v_{z0} - \cos(I_B(t_0)) (I_{E \sin}(t) - I_{E \sin}(t_0)) \\
 & + \sin(I_B(t_0)) (I_{E \cos}(t) - I_{E \cos}(t_0))]
 \end{aligned} \tag{3.93c}$$

Analog kann auch für die Funktion des Ortsvektors vorgegangen werden. Hierfür sind sechs weitere Integraldefinitionen notwendig.

$$I_{\cos I_B}(t) := \int_0^t \cos(I_B(\tau)) d\tau \tag{3.94}$$

$$I_{\sin I_B}(t) := \int_0^t \sin(I_B(\tau)) d\tau \tag{3.95}$$

$$I_{E \cos \cos I_B}(t) := \int_0^t I_{\cos I_B}(\tau) \cos(I_B(\tau)) d\tau \tag{3.96}$$

$$I_{E \cos \sin I_B}(t) := \int_0^t I_{\cos I_B}(\tau) \sin(I_B(\tau)) d\tau \tag{3.97}$$

$$I_{E \sin \cos I_B}(t) := \int_0^t I_{\sin I_B}(\tau) \cos(I_B(\tau)) d\tau \tag{3.98}$$

$$I_{E \sin \sin I_B}(t) := \int_0^t I_{\sin I_B}(\tau) \sin(I_B(\tau)) d\tau \tag{3.99}$$

Auf die konkrete Herleitung wird hierbei aus platztechnischen Gründen verzichtet. Nach einigen Vereinfachungsschritten erhält man folgende Gleichungen:

$$\begin{aligned}
r_x = r_{x0} &+ [I_{\cos I_B}(t) - I_{\cos I_B}(t_0)][v_{x0} \cos(I_B(t_0)) + v_{z0} \sin(I_B(t_0))] \\
&+ [I_{\sin I_B}(t) - I_{\sin I_B}(t_0)][v_{x0} \sin(I_B(t_0)) - v_{z0} \cos(I_B(t_0))] \\
&+ I_{E \sin \sin I_B}(t) - I_{E \sin \sin I_B}(t_0) - I_{E \sin}(t_0)[I_{\sin I_B}(t) - I_{\sin I_B}(t_0)] \\
&+ I_{E \cos \cos I_B}(t) - I_{E \cos \cos I_B}(t_0) - I_{E \cos}(t_0)[I_{\cos I_B}(t) - I_{\cos I_B}(t_0)]
\end{aligned} \tag{3.100a}$$

$$r_y = r_{y0} + v_{y0}(t - t_0) \tag{3.100b}$$

$$\begin{aligned}
r_z = r_{z0} &+ [I_{\sin I_B}(t) - I_{\sin I_B}(t_0)][v_{x0} \cos(I_B(t_0)) + v_{z0} \sin(I_B(t_0))] \\
&+ [I_{\cos I_B}(t) - I_{\cos I_B}(t_0)][-v_{x0} \sin(I_B(t_0)) + v_{z0} \cos(I_B(t_0))] \\
&+ I_{E \cos \sin I_B}(t) - I_{E \cos \sin I_B}(t_0) - I_{E \cos}(t_0)[I_{\sin I_B}(t) - I_{\sin I_B}(t_0)] \\
&- I_{E \sin \cos I_B}(t) + I_{E \sin \cos I_B}(t_0) + I_{E \sin}(t_0)[I_{\cos I_B}(t) - I_{\cos I_B}(t_0)]
\end{aligned} \tag{3.100c}$$

In der Simulation selbst werden die hier eingeführten Integralfunktionen in $\Delta t_{Integral} = 0.05 \text{ fs}$ Schritten numerisch ausgewertet und zwischen diesen Stützstellen quadratisch interpoliert. Somit ergibt sich erneut eine kontinuierliche Funktion, welche für die Berechnung des Orts-/Geschwindigkeitsvektors bzw. der verbleibenden Integralfunktionen genutzt werden kann. Die programmier-technische Umsetzung ist dabei in Programmcode 3.4 dargestellt.

3.4 Programmiertechnische Umsetzung der Simulationsumgebung

Im folgenden Kapitel wird die programmiertechnische Umsetzung der Simulationsumgebung näher diskutiert. Der Ablauf des Programms ist dabei in Abb. 3.15 als Blockdiagramm dargestellt.

Zunächst wird auf die verschiedenen Zeitvariablen eingegangen. Zum einen gibt es $t_{Start,XUV}$, $t_{Ende,XUV}$ und Δt_{XUV} , welche den Zeitpunkt beschreiben, zu dem der XUV-Puls in die Simulationsumgebung eintritt. Diese können als eine Art Startzeitpunkt der Simulation interpretiert werden. Physikalisch gesehen kennzeichnet der Startzeitpunkt den Abstand der Maxima des XUV-Pulses zum IR-Puls. $t_{Simulation}$, $t_{Simulation,Ende}$ und Δt_{RKN} geben den aktuellen Zeitpunkt an, bei welchem man sich im Simulationsdurchlauf des Startzeitpunktes $t_{Start,XUV}$ befindet. Folglich startet $t_{Simulation}$ immer bei $t_{Start,XUV}$ und wird in Δt_{RKN} -Schritten bis auf $t_{Simulation,Ende}$ erhöht. Für jeden Zeitschritt wird dabei die Bewegungsglei-

3 Erstellung der Simulationsumgebung

Programmcode 3.4: Numerische Berechnung der Integralfunktionen eines beliebigen Integranden $func2integrate(t)$.

```
dt_int = 0.05    # Zeitschritt der numerischen Integration
t_int = np.arange(0, t_end + dt_int, dt_int)
N = len(dt_int)  # Anzahl an Stuetzstellen

# Numerische Berechnung des Integrals
integral = np.cumsum([0] + [integrate.quad(func2integrate,
                                           dt_int[i],
                                           dt_int[i+1])[0]
                        for i in range(N - 1)])
# Diskrete Integralwerte -> kontinuierliche Funktion
integral_interpol = interpolate.interpld(t_int,
                                         integral,
                                         kind='quadratic')
```

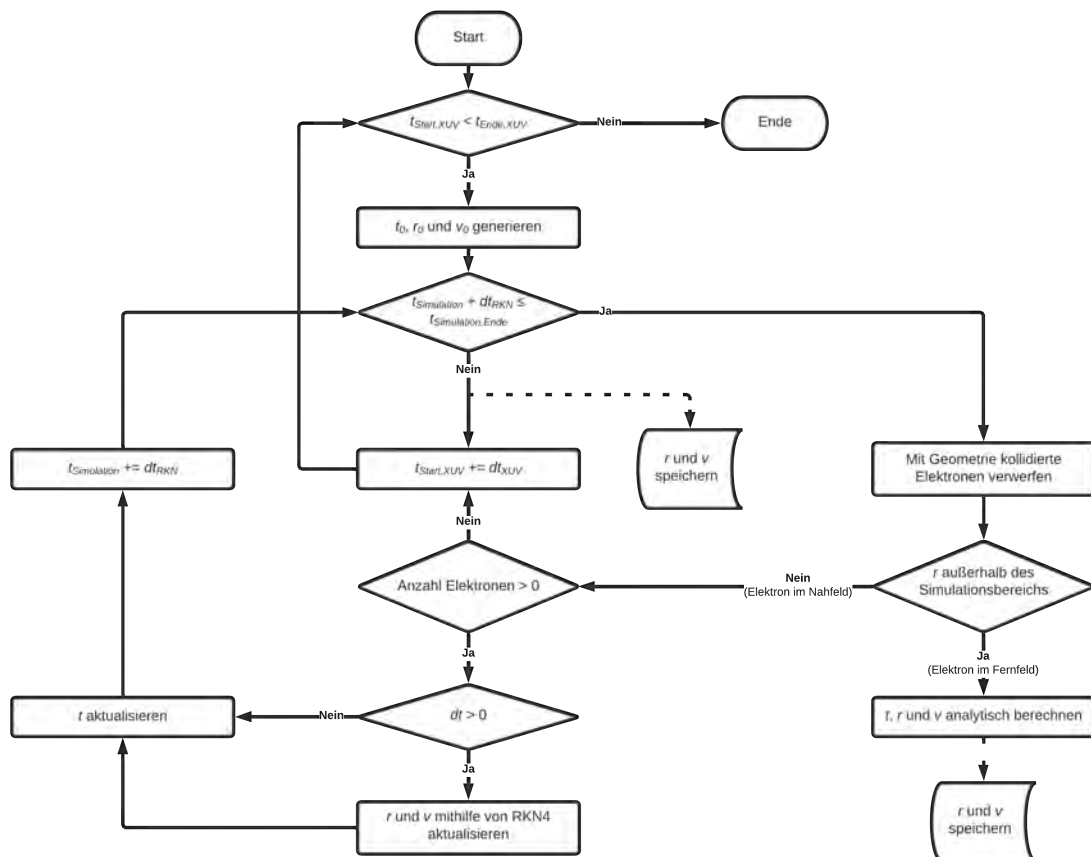


Abbildung 3.15: Blockdiagramm der programmiertechnischen Umsetzung des Hauptteils der Simulationsumgebung.

chung der Elektronen numerisch gelöst. Die Variablen t und Δt sind Eigenschaften eines Elektrons. Diese stimmen die meiste Zeit mit den Variablen $t_{Simulation}$ und Δt_{RKN} überein. Jedoch benötigen die Elektronen am Anfang der Simulation eine gewisse Emissionszeit, um aus dem Festkörper auszutreten. In dieser Zeit dürfen die Photoelektronen nicht in der Simulation berücksichtigt werden. Für jeden Startzeitpunkt $t_{Start,XUV}$ entspricht t zunächst der Emissionszeit und bleibt bis zu dem Zeitpunkt $t_{Simulation} > t$ konstant. In dieser Zeit wird die Bewegungsgleichung des Elektrons nicht gelöst. Anschließend sind die beiden Größen identisch.

In einem ersten Schritt werden für den aktuellen Startzeitpunkt $t_{Start,XUV}$ die Anregezeit, -position und -geschwindigkeit t_0 , \vec{r}_0 und \vec{v}_0 für N angeregte Elektronen nach dem Algorithmus aus Kap. 3.2 gebildet. Anschließend folgt eine Schleife, bei dem über alle Zeitpunkte $t_{Simulation}$ iteriert wird. In einem ersten Schritt werden die Photoelektronen gefiltert. Dabei werden diejenigen Elektronen, deren aktueller Ortsvektor \vec{r} mit der Geometrie kollidiert, aus der Simulation entfernt und nicht weiter betrachtet [56–58]. Befindet sich das Elektron außerhalb des Simulationsbereichs, so wird für die verbleibende Zeit $t_{Simulation,Ende} - t_{Simulation}$ die Bewegungsgleichung des Elektrons in einem Schritt nach den Gleichungen 3.93a - 3.93c bzw. 3.100a - 3.100c analytisch gelöst. Die finale Position und Geschwindigkeit werden abschließend gespeichert. Für die verbleibenden Elektronen im Nahfeld wird das entsprechende Δt berechnet.

$$\Delta t = t_{Simulation} + \Delta t_{RKN} - t \quad (3.101)$$

Für den Fall, dass der folgende Zeitschritt $t_{Simulation} + \Delta t_{RKN}$ vor der Anregezeit des Elektrons liegt, ist Δt negativ. Hierbei wird das Elektron im folgenden Aktualisierungsschritt unberücksichtigt gelassen, da dieses noch nicht emittiert wurde. Liegt t zwischen dem aktuellen und dem folgenden Zeitschritt, so gilt $0 < \Delta t < \Delta t_{RKN}$. In diesem Fall wird die Bewegungsgleichung für diesen verkürzten Zeitschritt gelöst. Lag der Anregezeitpunkt vor $t_{Simulation}$, so gilt $t = t_{Simulation}$ und somit auch $\Delta t = \Delta t_{RKN}$. In den letzten beiden Fällen wird die Position \vec{r} und Geschwindigkeit \vec{v} nach dem Runge-Kutta-Nyström-Verfahren aus Kap. 3.3.1 angepasst. Anschließend wird die Zeit für alle Elektronen und die Simulationszeit aktualisiert.

$$\hat{t} = \begin{cases} t_{Simulation} + \Delta t_{RKN}, & t < t_{Simulation} + \Delta t_{RKN} \\ t, & \text{sonst} \end{cases} \quad (3.102)$$

$$\hat{t}_{Simulation} = t_{Simulation} + \Delta t_{RKN} \quad (3.103)$$

Erreicht $t_{Simulation}$ das Ende der Simulationszeit $t_{Simulation,Ende}$, so werden die Positionen und Geschwindigkeiten der verbleibenden Elektronen im Nahfeld gespeichert und mit einem neuen Anfangszeitpunkt $\hat{t}_{Start,XUV} = t_{Start,XUV} + \Delta t_{XUV}$ fortgefahren. Ist dies für alle Startzeitpunkte geschehen, endet die Simulation.

Zwei essenzielle Parameter für die Simulation sind zum einen der Zeitschritt Runge-Kutta-Nyström-Verfahrens Δt_{RKN} und zum anderen die Anzahl an simulierten Elektronen N . Ersterer Parameter bestimmt hierbei über den numerischen Fehler, der bei der Lösung der Bewegungsgleichung entsteht. Je kleiner Δt_{RKN} gewählt wird, desto geringer wird auch der Fehler. Jedoch steigt durch die erhöhte Anzahl an Rechenschritten die Rechenzeit. Aus diesem Grund wurde für 10 000 zufällig erzeugter Elektronen der oben beschriebene Simulationsalgorithmus mit verschiedenen Δt_{RKN} durchgeführt. Als Geometrie diente eine Goldkugel mit Radius 5 nm . Die genauen Simulationsparameter werden im folgenden Kapitel 4.1 genauer vorgestellt. Da die exakte Lösung nicht bekannt ist, wurde als Referenzwert die Simulation mit der kleinsten Schrittweite $\Delta t_{RKN,min} = 0.001 \text{ fs}$ gewählt. Gemessen wurde der euklidische Abstand zur durchschnittlichen Position aller Elektronen, sowie zweier zufällig ausgewählter Photoelektronen unterschiedlicher Energie. Zusätzlich wurde die durchschnittliche Energiedifferenz der finalen Elektronenenergie zur Referenzsimulation aufgetragen. Die Ergebnisse finden sich in Abb. 3.16.

Hierbei ist zu erkennen, dass wie erwartet mit sinkendem Δt_{RKN} der Fehler gegen Null konvergiert. Zudem sind die Fehler für energiereiche Elektronen größer als diejenigen der Energieärmeren. Als Zeitschritt wurde $\Delta t_{RKN} = 0.025 \text{ fs}$ gewählt, da hier der Fehler der Position selbst bei den energiereichen Elektronen im Bereich von 100 pm liegt und somit vernachlässigbar ist. Auch die Abweichung der finalen Elektronenenergie im Bereich einiger hundertstel eV ist ausreichend gering.

Die Elektronenanzahl N ist ebenfalls entscheidend, da es sich um eine Monte-Carlo-Simulation handelt. Nur bei ausreichend großem N greift das Gesetz der

großen Zahlen und die Lösung konvergiert gegen das tatsächliche Resultat. Auch hier wurde aus diesem Grund der oben aufgeführte Simulationsalgorithmus für verschiedene Elektronenanzahlen ausgeführt. Als Referenzwert dient diesmal die Simulation mit $N = 31\,622\,776$ Elektronen. Dabei wurden zum einen der Durchschnitt aller Elektronen betrachtet. Zum anderen wurde diese in energiearme und -reiche Elektronen ($\varepsilon \leq 80\text{ eV}$ bzw. $\varepsilon > 80\text{ eV}$) unterteilt. Als Geometrie wurde analog zur Bestimmung des Zeitschritts Δt_{RKN} eine Goldkugel mit 5 nm Radius gewählt. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.17 dargestellt.

In diesem Fall ist ebenfalls mit steigendem N eine Konvergenz des Fehlers gegen Null zu erkennen. Bei der finalen Position weisen erneut die energiereichen Elektronen den höheren Fehler auf. Dies lässt sich damit begründen, dass diese anteilmäßig den deutlich kleineren Teil der Gesamtzahl der Photoelektronen ausmachen. Dies ist in Abb. 3.14 zu sehen. Auf die Energiedifferenz scheint das Ganze hingegen keinen Einfluss zu haben. Für die kommenden Simulationen wurde eine Elektronenanzahl von $N = 5\,000\,000$ gewählt. Erst hier sinkt der Fehler der durchschnittlichen Endposition in den Bereich von 0.2 nm . Die Genauigkeit der finalen Elektronenenergie ist mit wenigen hundertstel eV ebenfalls ausreichend gering.

3 Erstellung der Simulationsumgebung

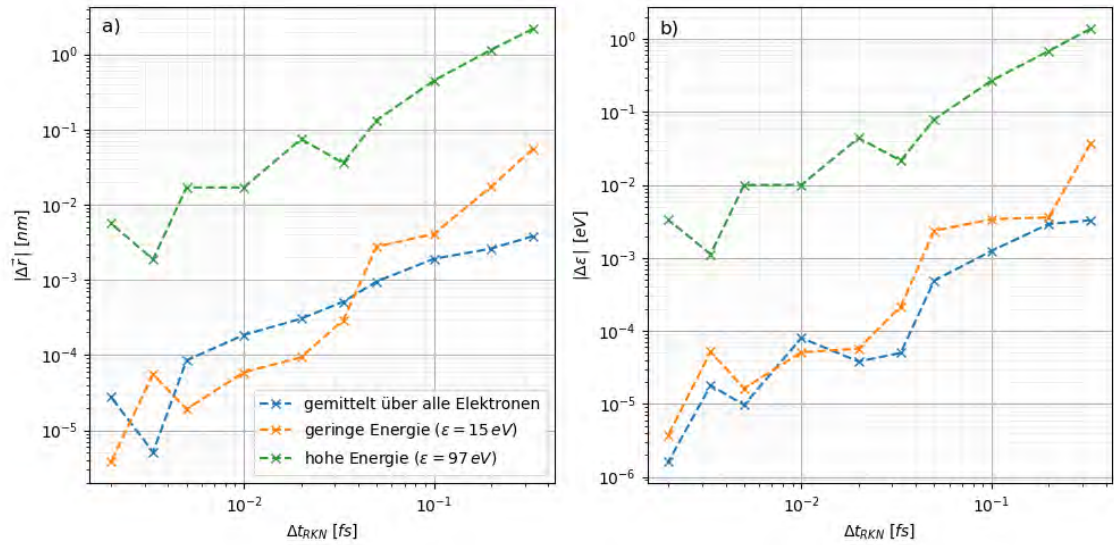


Abbildung 3.16: Graphische Darstellung der finalen Elektronenposition (a) und der finalen kinetischen Energie (b) in Abhängigkeit des Zeitschritts des Runge-Kutta-Nyström-Verfahrens.

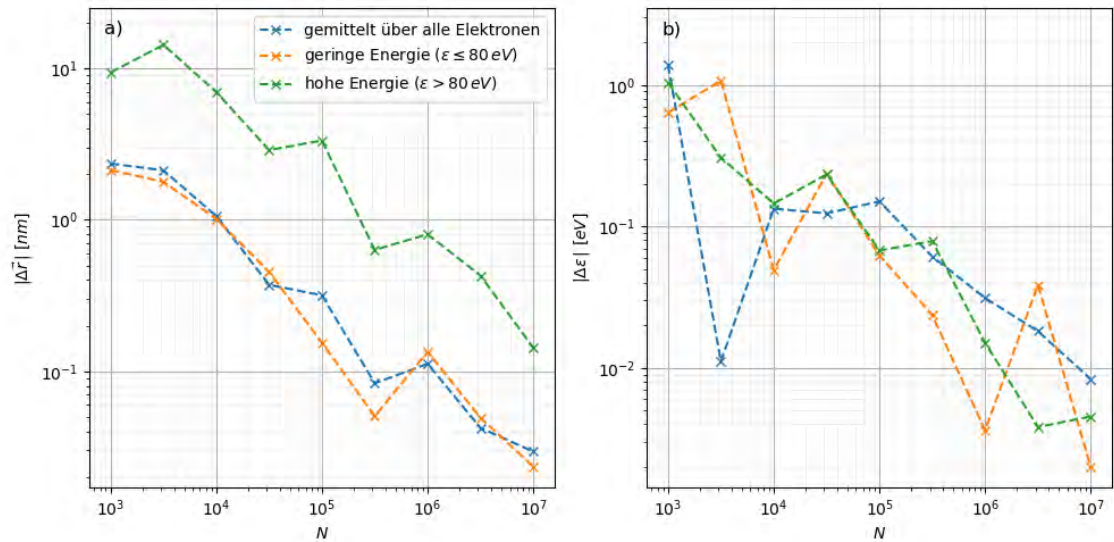


Abbildung 3.17: Graphische Darstellung der finalen Elektronenposition (a) und der finalen kinetischen Energie (b) in Abhängigkeit der für die Simulation verwendeten Elektronenanzahl.

4 Ergebnisse

In diesem Kapitel wird die in Kap. 3 entwickelte Simulationsumgebung an einigen Beispielgeometrien getestet. Hierfür werden die Elektronenstreaking-Spektren der jeweiligen Geometrien erstellt und diskutiert. Bei diesen wird als Falschfarbenplot die Energieverteilung der Photoelektronen nach deren Beschleunigung im plasmonischen Feld in Abhängigkeit des Zeitversatzes τ des XUV-Pulses im Vergleich zum IR-Puls dargestellt. Experimentell sind solche Messungen mithilfe eines TOF-Detektors möglich. Grundsätzlich stellen auch andere Auswertungen für die hier entwickelte Simulationsumgebung kein Problem dar. So sind sowohl alle drei Positions- als auch Impulskomponenten Output der Simulation, sodass beispielsweise Messergebnisse eines Velocity-Map-Imaging-Detektors (VMI) nachgestellt werden können. Mithilfe dieses Detektors ist man in der Lage die drei Impulskomponenten der Photoelektronen in Abhängigkeit voneinander zu messen.

Die Simulationsparameter sind in Tab. 4.1 dargestellt, die Materialparameter mit- samt Quelle in Tab. 4.2. Diese werden, soweit nicht anders erwähnt, für die folgenden Simulationen verwendet.

Im ersten Teil wird zunächst die Simulationsumgebung verifiziert, indem die Ergebnisse mit denjenigen von Saydanzad et al. [41] verglichen werden. Hierfür wurden die Streaking-Spektren einer Nanokugel aus Gold simuliert. Anschließend wird eine Bowtie-Nanoantenne untersucht, da diese Nanoantenne von besonderem Interesse im Bereich der Nanostrukturen ist. Abschließend werden die Simulationen zweier Diskresonatoren ausgewertet. Bei diesen Mehrschichtsystemen kommt es, wie bereits in Kap. 3.1.7 dargelegt, zu komplexen Modenbildern, die sich ebenfalls in den Streaking-Spektren widerspiegeln. Hierbei wird zudem der Einfluss der CEP des IR-Pulses auf die Streaking-Spektren untersucht.

Tabelle 4.1: Parameterwerte der beiden Laserpulse der Simulationen.

IR-Laserpuls		XUV-Laserpuls	
I_{IR}	$10^{12} \frac{W}{cm^2}$	ε_{XUV}	92.5 eV
Δt_{IR}	4.5 fs	Δt_{XUV}	250 as
λ_{IR}	780 nm		
ϕ_{CEP}	$-\pi/2$		

Tabelle 4.2: Materialparameter mitsamt Quelle der Simulationen.

	phy. Größe		Au	Ag	Graphen	SiO ₂	h-BN
Meep	dielektrische Funktion	$\epsilon(\omega)$	[38]	[38]	[39]	[36]	[37]
	Energieverlustfunktion	$\text{Im} \left[\frac{-1}{\epsilon(\omega)} \right]$	[45]	[45]	[51]		
Photo-emission	Fermi-Niveau	ε_F	5.53 eV [23]	5.49 eV [23]	4.57 eV [59]		
	Austrittsarbeit	W	5.1 eV [60]	4.3 eV [60]	5.0 eV [61]		
	effektive Elektronenmasse	m_e^*	1.1 m_e [62]	0.99 m_e [62]	0.031 m_e [63]		
	Dichte	ρ	19.3 $\frac{g}{cm^3}$ [64]	10.49 $\frac{g}{cm^3}$ [64]	2.27 $\frac{g}{cm^3}$ [65]		

4.1 Nanokugel aus Gold

In diesem Kapitel werden die Elektronenstreaking-Spektren einer Nanokugel simuliert und analysiert. Zur Verifikation der hier entwickelten Simulationsumgebung werden die Ergebnisse mit denjenigen von Saydanzad et al. [41] verglichen. Daher wurden für die hier durchgeführten Simulationen die Parameter aus diesem Paper übernommen, welche in Tab. 4.3 dargestellt sind. Als Material der Kugel wurde Gold gewählt, der Radius beträgt 5 nm bzw. 50 nm. Die Maße der Simulationsumgebungen sind in Abb. 4.1 visualisiert.

Die simulierten elektrischen Felder sind in Abb. 4.2 zu sehen und zeigen die erwartete Dipolstruktur. Die Verstärkungsfaktoren des elektrischen Feldes an den Polen gegenüber des einfallenden IR-Pulses fallen im Vergleich mit den Literaturwerten etwas geringer aus. Diese liegen bei den Meep-Simulationen bei 3.0 bzw. 3.7 für die Nanokugel mit einem Radius von 5 nm bzw. 50 nm. Die theoretisch errechneten Verstärkungsfaktoren sind in Abhängigkeit der Wellenlänge für Nanokugeln mit verschiedenen Radien in Abb. 4.3 dargestellt.

Tabelle 4.3: Parameterwerte der beiden Laserpulse von Saydanzad et al. [41], die in diesem Kapitel verwendet werden.

IR-Laserpuls		XUV-Laserpuls	
I_{IR}	$10^{12} \frac{W}{cm^2}$	ε_{XUV}	105 eV
Δt_{IR}	2.472 fs	Δt_{XUV}	287 as
λ_{IR}	720 nm		
ϕ_{CEP}	0		

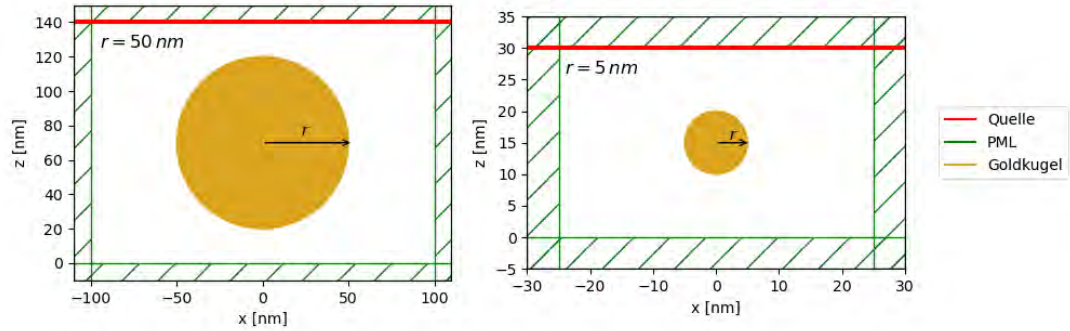


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Simulationsumgebung der beiden simulierten Nanokugeln aus Gold.

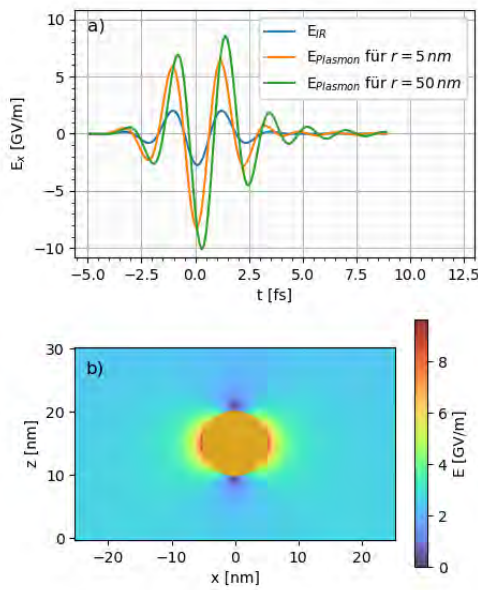


Abbildung 4.2: Graphische Darstellung der elektrischen Feldstärke der Goldkugeln. Abbildung der x-Komponente der elektrischen Feldstärke an der Grenzfläche der Kugel zum Vakuum auf der x-Achse in (a) und des Betrags der elektrischen Feldstärke zum Zeitpunkt $\tau = 0.2 \text{ fs}$ in der x-z-Ebene für einen Radius von $r = 5 \text{ nm}$ in (b).

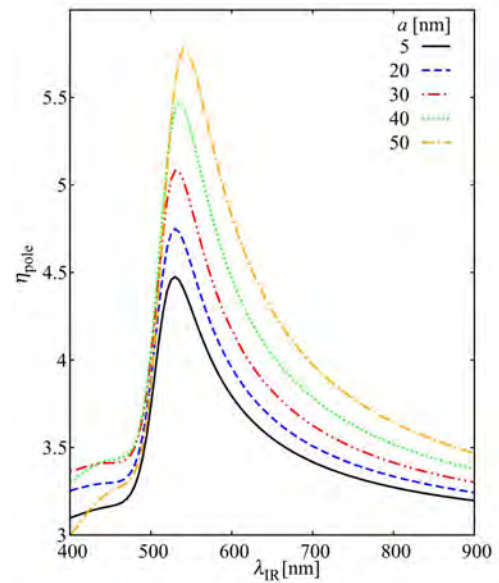


Abbildung 4.3: Verstärkungsfaktor des plasmonischen Feldes an den Polen einer Goldnanokugel mit dem Radius a in Abhängigkeit der zentralen Wellenlänge λ_{IR} des einfallenden IR-Pulses mit einer Intensität von 10^{12} W/cm^2 . Abbildung übernommen aus [41].

Für eine bessere Vergleichbarkeit der Ergebnisse wurden zunächst analog zu den Simulationen von Saydanzad et al. die Sekundärelektronen nicht berücksichtigt. Kommt es zu einem in Kap. 3.2 beschriebenen Stoßprozess, so wird das entsprechende Elektron nicht weiter betrachtet. Der TOF-Detektor wird in positiver x -Richtung mit einem Erfassungswinkel von $\alpha_x = \pi/4$ platziert. Somit wurden lediglich diejenigen Elektronen betrachtet, deren Geschwindigkeitsvektor einen Winkel kleiner α_x mit der x -Achse einschließt.

Die Simulationsergebnisse der Streaking-Spektren sind in Abb. 4.4 und 4.5(a) bzw. 4.5(b) gegenübergestellt. Diese Ergebnisse scheinen insgesamt sehr gut mit denjenigen der hier neu entwickelten Simulationsumgebung übereinzustimmen. In den Simulationen stimmen sowohl die Höhe als auch die Lage der Maxima überein. Zudem sind in beiden Simulationen Bereiche mit besonders hoher Elektronendichte erkennbar. Diese sind in der Abbildung mit roten Kreisen gekennzeichnet. Die Spektren können als Superposition von Photoelektronen verschiedener Austrittspositionen interpretiert werden. Werden diese Spektren für Elektronen, welche in der x - z -Ebene austreten, einzeln betrachtet, so überlappen diese sich an den markierten Punkten. In Summe führt dies zu einer erhöhten Elektronendichte in diesen Spektralbereichen. Derartige Bereiche sind charakteristisch für diesen Typ von Simulationen und treten beispielsweise auch dann auf, wenn lediglich Elektronen am Rande des Ferminiveaus berücksichtigt werden [66].

Zudem ist die Wahl der Detektorposition entscheidend, wie in Abb. 4.5 zu sehen. Platziert man den Detektor auf der negativen x -Achse, man betrachtet folglich nur diejenigen Elektronen, deren Geschwindigkeitsvektor einen Winkel größer $\alpha_x = 3\pi/4$ mit der x -Achse einschließt, so erhält man eine vorzeicheninverse Aus-

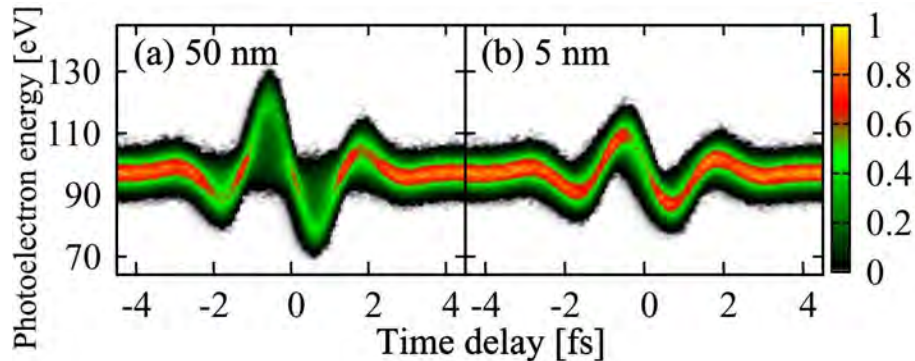


Abbildung 4.4: Streaking-Spektrum der Goldkugel mit Radius $r = 50 \text{ nm}$ in (a) und $r = 5 \text{ nm}$ in (b) aus den Simulationen von Saydanzad et al. [41]. Abbildung übernommen aus [41].

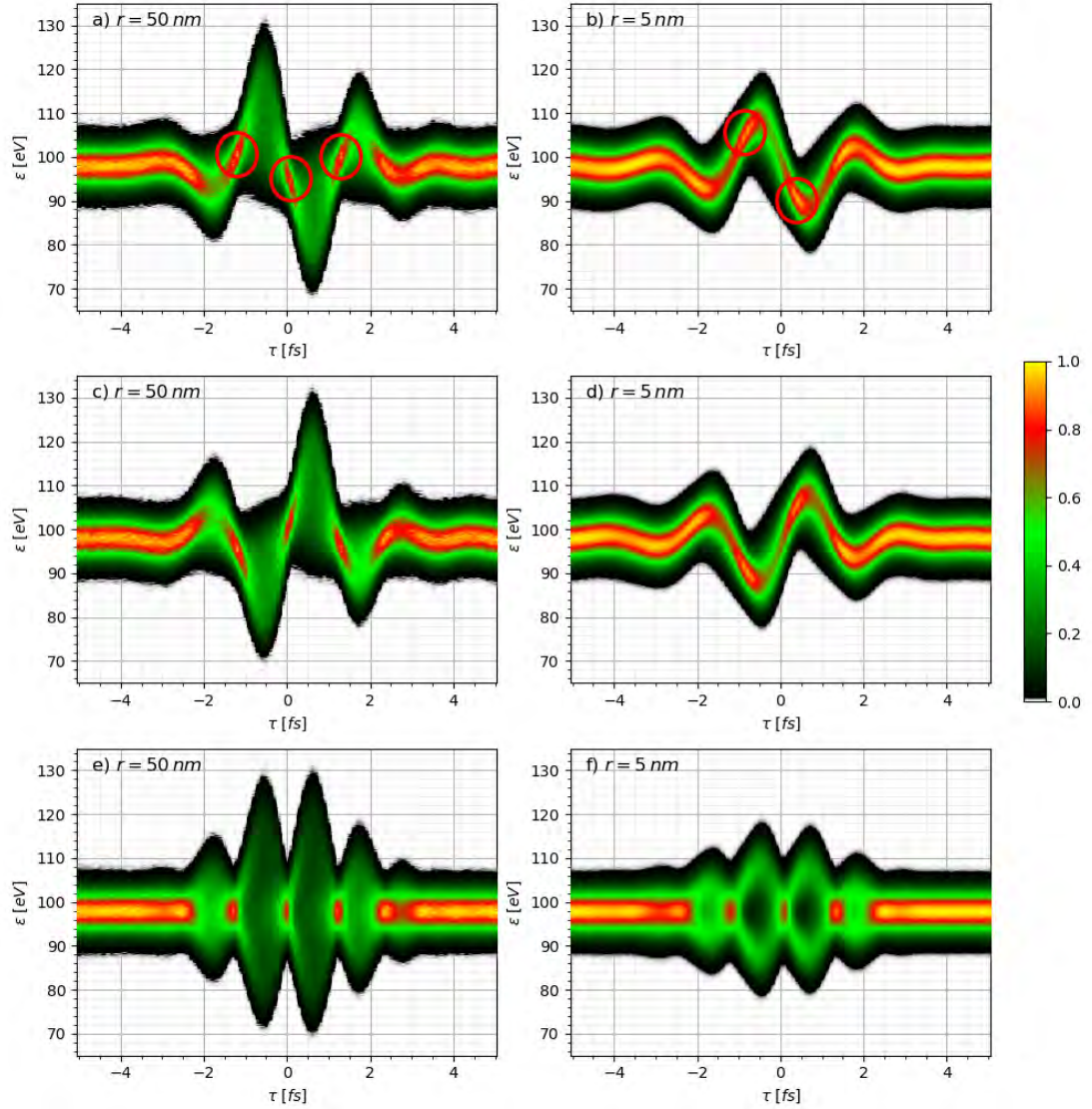


Abbildung 4.5: Streaking-Spektrum der Goldkugel mit Radius $r = 50 \text{ nm}$ in (a), (c), (e) und $r = 5 \text{ nm}$ in (b), (d), (f) für verschiedene Detektorpositionen. Streaking-Spektrum bei der Platzierung des TOF-Detektors in positive x -Richtung mit einem Erfassungswinkel von $\alpha_x < \pi/4$ in (a), (b), in negative x -Richtung mit einem Erfassungswinkel von $\alpha_x > 3\pi/4$ in (c), (d) und bei der Betrachtung aller Photoelektronen in (e), (f).

lenkung der Elektronenenergie. Dieses Ergebnis lässt sich mit der Symmetrie der Anordnung begründen. So ist das Vorzeichen der x-Komponente des elektrischen Feldes an beiden Polen stets identisch. Aus diesem Grund werden am einen Ende der Kugel die Elektronen auf diese zu und am anderen Ende von dieser weg beschleunigt. Betrachtet man alle simulierten Elektronen, so ist eine Superposition aus den zwei bisher diskutierten Fällen erkennbar.

Anhand der Streaking-Spektren können Rückschlüsse auf das treibende plasmonische Feld gezogen werden. Dabei ist für gasförmige atomare Ziele die Streaking-Amplitude direkt proportional zur Wellenlänge und Amplitude des einfallenden IR-Laserpulses [41]. Bei den Nanokugeln muss zudem noch der wellenlängenabhängige Verstärkungsfaktor des plasmonischen Feldes mit einbezogen werden. Dieser lässt sich somit aus den gemessenen Spektren rekonstruieren. Bei Nanokugeln aus Gold steigt der Verstärkungsfaktor mit zunehmendem Radius (vgl. Abb. 4.3), was sich wiederum in einer höheren Streaking-Amplitude auch bei den Messungen widerspiegelt. Dies ist in Abb. 4.6 abgebildet. Hier sind die Mittelwerte der Energien (COE, engl. *center of energy*) für jeden Zeitschritt dargestellt. Zudem wurde als Referenzwert die Simulation ohne plasmonisches Feld E_{Pl} ausgeführt. Vergleicht man die COE-Kurven miteinander, so ergeben sich Verstärkungen von 1.77 bzw. 2.21 für die Radien 5 nm bzw. 50 nm . Diese liegen somit beide um denselben Faktor 0.6 niedriger als die oben aufgeführten Verstärkungsfaktoren der elektrischen Felder, was auf eine direkte Proportionalität hindeutet. Diese Proportionalität bleibt auch bei der Variation der Wellenlänge des einfallenden Laserpulses bestehen, wie von Li et al. gezeigt wurde [67]. Des Weiteren kann auch die Phasenverschiebung des plasmonischen Feldes mithilfe dieser Methode ermittelt werden.

Betrachtet man in der Simulation auch die Sekundärelektronen, so ergibt sich ein recht ähnliches Bild, wie in Abb. 4.7 zu sehen. Die Streaking-Amplitude bleibt sowohl in positive als auch in negative Richtung gut ablesbar und wird durch die Sekundärelektronen nur vernachlässigbar beeinträchtigt. Die COE ist wie zu erwarten durch die niederenergetischen Sekundärelektronen mit einer deutlichen Abnahme des Hauptpeaks leicht nach unten verschoben. Die Sekundärelektronen lassen sich jedoch aufgrund der gaußähnlichen Beschaffenheit der Spektren bei den einzelnen Zeitschritten aus dem gesamten Spektrum herausfiltern. Dabei erreicht die COE-Kurve wieder nahezu die ursprüngliche Form, wie in Abb. 4.7(d) abgebildet.

4 Ergebnisse

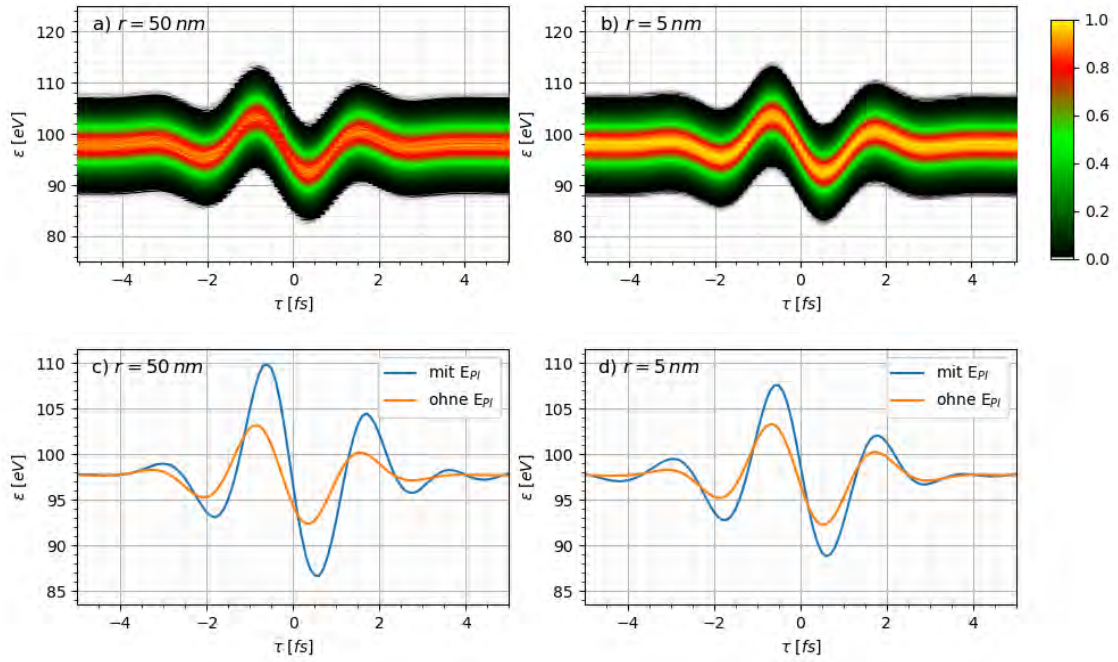


Abbildung 4.6: Streaking-Spektren ohne plasmonisches Feld der Goldkugel mit Radius $r = 50 \text{ nm}$ in (a) und $r = 5 \text{ nm}$ in (b). Vergleich der COE der Spektren mit und ohne plasmonischem Feld in (c), (d).

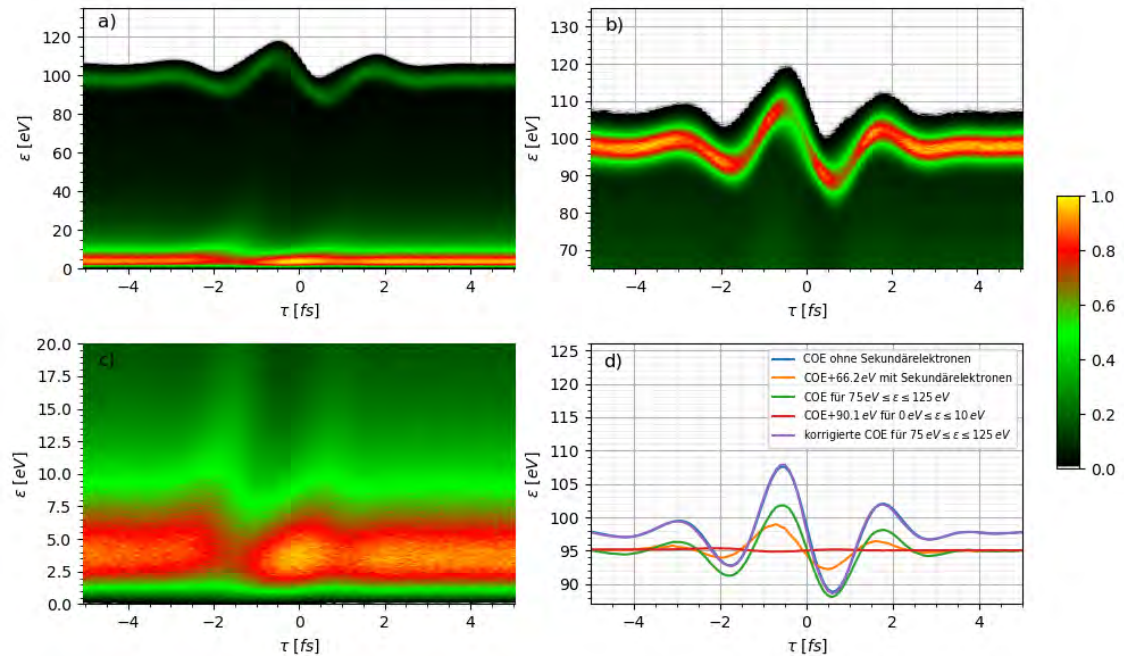


Abbildung 4.7: Streaking-Spektrum der $r = 5 \text{ nm}$ Goldkugel mit Sekundärelektronen: (a) das komplette Spektrum, (b) Betrachtung der hochenergetischen Elektronen, (c) Betrachtung der niederenergetischen Elektronen und (d) Vergleich der COE-Werte.

Bei den Sekundärelektronen mit geringer Energie ist kaum noch eine Streaking-Amplitude vorhanden. Dies liegt daran, dass die Elektronen zu sehr unterschiedlichen Zeitpunkten von der Geometrie emittiert werden, wie in Abb. 3.14 zu sehen. So liegt dieser Zeitversatz bei bis zu mehreren Femtosekunden. Damit wirken vollkommen verschiedene plasmonische Vektorpotentiale am Zeitpunkt der Emission auf die Elektronen. Hinzu kommt, dass die Geschwindigkeit der Photoelektronen recht gering ist. So besitzt ein Elektron mit einer Energie von $\varepsilon = 4 \text{ eV}$ eine Geschwindigkeit von etwa $|\vec{v}| = 1.2 \frac{\text{nm}}{\text{fs}}$. Folglich befinden sich diese unter Umständen mehrere Zyklen im plasmonischen Feld, wodurch sich positive und negative Beschleunigung in etwa auslöschen.

4.2 Bowtie-Nanoantenne

Plasmonische Nanoantennen sind im Bereich der Nanostrukturen von besonderem Interesse, da sie elektromagnetische Wellen aus dem freien Raum in einem Bereich um einiges kleiner als die Wellenlänge mit hoher Feldverstärkung bündeln können [68]. Dies ermöglicht eine Vielzahl von Anwendungen wie oberflächenverstärkte Raman-Spektroskopie, Einzelmoleküldetektion, hochempfindliche Photodetektion und Lichtquellen im Nanobereich. Die in diesem Abschnitt untersuchte Bowtie-Nanoantenne ist in Abb. 4.8 dargestellt. Diese ist $h = 50 \text{ nm}$ hoch, die Maße in x- und y-Richtung betragen $l_x = 76 \text{ nm}$ und $l_y = 100 \text{ nm}$. Der Abstand der beiden Teile der Nanoantenne liegt bei $g = 20 \text{ nm}$. Um die numerischen Fehler zu minimieren, wurden zudem die Spitzen der dreieckigen Grundfläche mit einem Radius von $r = 10 \text{ nm}$ versehen und somit scharfe Kanten ver-

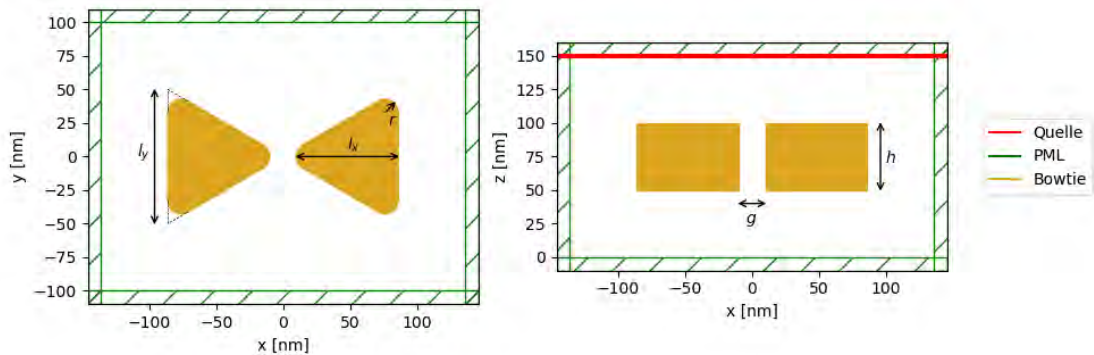


Abbildung 4.8: Schematische Darstellung der Simulationsumgebung der Bowtie-Nanoantenne mitsamt dessen Abmessungen.

mieden. Wie bereits im vorangegangenen Abschnitt besteht die Nanostruktur aus Gold.

Das resultierende elektrische Feld ist in Abb. 4.9 zu sehen. Die elektrische Feldstärke ist dabei wie zu erwarten zwischen den beiden Spitzen am höchsten. Die Feldverstärkung im Mittelpunkt der Bowtie-Struktur liegt bei den hier durchgeführten Simulationen bei 8.0 und ist somit um einiges höher als diejenige der Nanokugel. Wie ebenfalls zu sehen, ist die elektrische Feldstärke an den oberen und unteren scharfen Kanten nochmals um ungefähr das doppelte größer als diejenige im Zentrum zwischen den beiden Spitzen. Auch an den Rückseiten der Bowtie-Geometrie liegt eine Feldverstärkung vor. Auf der x-Achse bei $x = 88 \text{ nm}$ beträgt diese 2.2 und ist damit etwas geringer als diejenige der beiden Nanokugeln.

Das Streaking-Spektrum ist in Abb. 4.10 dargestellt. Hier ist aufgrund der größeren Feldüberhöhung eine deutlich höhere Streaking-Amplitude als bei der Nano-

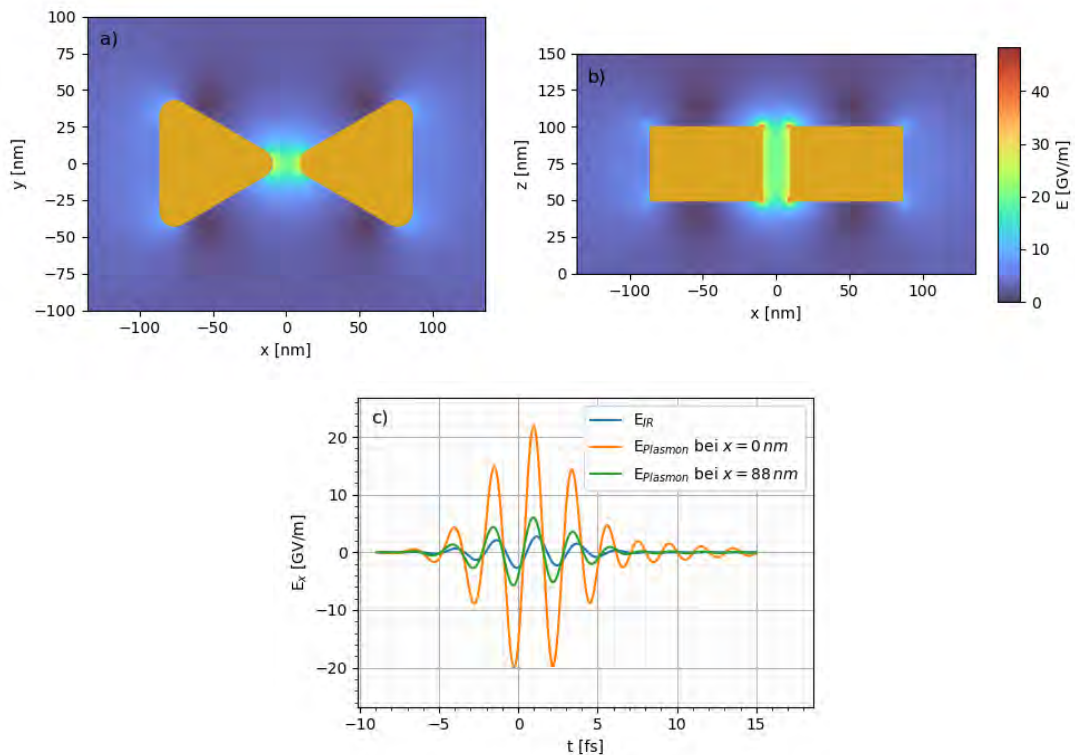


Abbildung 4.9: Graphische Darstellung der elektrischen Feldstärke der Bowtie-Nanoantenne. Abbildung des Betrags der elektrischen Feldstärke zum Zeitpunkt $\tau = -0.3 \text{ fs}$ in der x-y-Ebene (a) und in der x-z-Ebene (b). Darstellung der x-Komponente der elektrischen Feldstärke des IR-Pulses und verschiedener Punkte auf der x-Achse in (c).

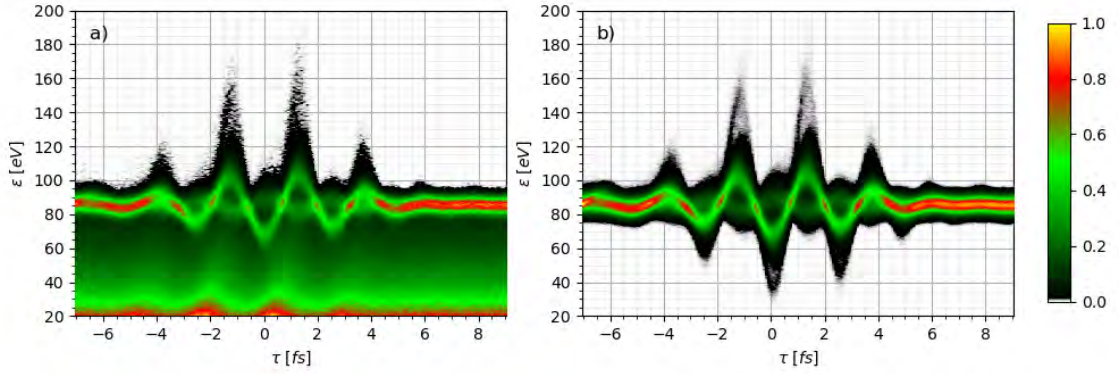


Abbildung 4.10: Streaking-Spektren der Bowtie-Nanoantenne (a) mit und (b) ohne Sekundärelektronen.

kugel erkennbar. Zudem kann das Spektrum im Wesentlichen in drei verschiedene Beiträge zerlegt werden, wie in Abb. 4.11(a) gezeigt. Der erste Beitrag lässt sich auf das Feld in der Mitte der Geometrie zwischen den beiden Spitzen zurückführen. Aufgrund der großen Feldverstärkung ist hier auch die Streaking-Amplitude größer als bei den beiden anderen Beiträgen. Dies wird zusätzlich in Abb. 4.11(b) und 4.11(c) deutlich. Hier wurden bei ersterem Graph lediglich diejenigen Elektronen betrachtet, welche aus den beiden abgerundeten Spitzen aus der Mitte der Geometrie stammen. Bei letzterem wurde zusätzlich die z-Komponente der Austrittsposition \vec{r}_0 auf $60 \text{ nm} < r_{z0} < 90 \text{ nm}$ beschränkt. Hierbei ist zu erkennen, dass die Streaking-Amplitude in 4.11(b) höher ausfällt als in 4.11(c). Dies liegt daran, dass das betragsmäßig größte elektrische Feld an den oberen und unteren Kanten zwischen den beiden Goldspitzen entsteht, wie in Abb. 4.9 zu sehen. Folglich werden in letzterem Fall diejenigen Elektronen, welche an genau dieser Stelle emittiert werden, nicht berücksichtigt. Somit sind diese hochenergetischen Photoelektronen in Abb. 4.11(c) nicht vorhanden.

Beitrag zwei besitzt eine ähnliche Phasenlage wie der Erste, jedoch mit geringerer Streaking-Amplitude. Dabei handelt es sich überwiegend um Elektronen, welche aus der Rückseite der Bowtie-Nanoantenne oder aus dem vorderen Bereich der anderen beiden Seitenflächen emittiert wurden, was in Abb. 4.12 deutlich erkennbar ist. Hier wurde die Elektronenposition am Ende der Simulation für einen Zeitversatz von $\tau = 1.3 \text{ fs}$ zum Zeitpunkt der Emission zurückgerechnet. Für diesen Fall wird angenommen, dass die Elektronen ihre Beschleunigung unmittelbar nach dem Austritt erfahren und sich anschließend mit konstanter Geschwindigkeit bewegen. Wie in der Abbildung zu sehen, entsteht so mit kleinen Abweichungen die ursprüngliche Bowtie-Struktur, was für die Validität dieser Annah-

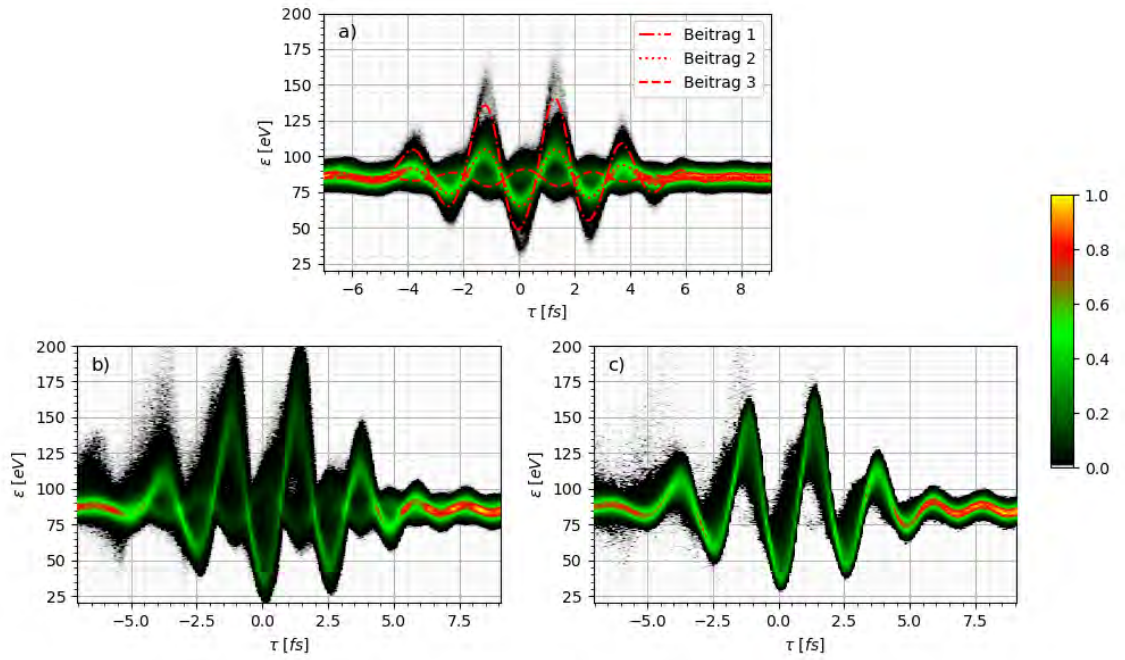


Abbildung 4.11: Beiträge des Streaking-Spektrums in (a) und Streaking-Spektren der Photoelektronen aus mittleren Spitzen der Bowtie-Nanoantenne: Betrachtung aller Elektronen mit (b) $(r_{x0} \pm 20 \text{ nm})^2 + r_{y0}^2 = (10 \text{ nm})^2$ und (c) $(r_{x0} \pm 20 \text{ nm})^2 + r_{y0}^2 = (10 \text{ nm})^2 \wedge 60 \text{ nm} < r_{z0} < 90 \text{ nm}$.

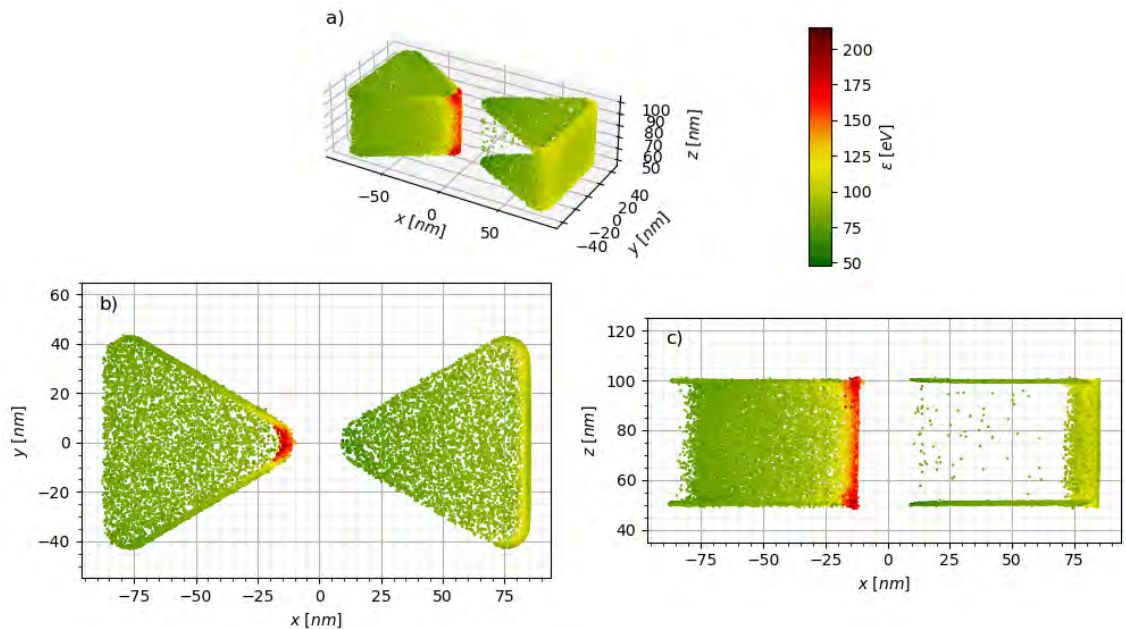


Abbildung 4.12: Approximation der Emissionspositionen mit zugehöriger finalen Elektronenenergie: (a) 3D-Ansicht, (b) x-y-Projektion der Emissionspositionen und (c) x-z-Projektion der Emissionspositionen.

me zur ungefähren Emissionspositionsbestimmung spricht. Aufgrund der geringeren Feldüberhöhung fällt bei diesem Beitrag auch die Streaking-Amplitude geringer aus als bei Beitrag eins. Infolge der größeren Oberfläche besitzt ersterer jedoch eine höhere Intensität und ist somit deutlicher im Spektrum zu erkennen.

Der dritte Beitrag besitzt eine Phasenverschiebung von etwa π im Gegensatz zu den beiden anderen und hat somit jeweils eine vorzeicheninverse Auslenkung. Die Streaking-Amplitude ist in diesem Vergleich ebenfalls geringer. Die Emission dieser Elektronen erfolgte überwiegend auf der Ober- und Unterseite der Bowtie-Nanoantenne, aber auch teilweise an den beiden Seitenflächen. Darauf deutet zum einen der Vergleich zwischen 4.11(b) und 4.11(c) hin. So ist in ersterer Abbildung diese phasenverschobene Schwingung vorhanden, da hier auch Elektronen berücksichtigt wurden, welche von der Ober- und Unterseite der beiden mittleren Spitzen stammen. Eben diese wurde in letzterer Abbildung nicht mit betrachtet und folglich ist in diesem Fall lediglich die Schwingung aus Beitrag eins zu erkennen. Zum anderen bestätigt auch die Position der Photoelektronen in Abb. 4.12 diese These. Die Elektronen mit geringer Energie stammen hauptsächlich von den beiden Ober- und Unterseiten, sowie dem hinteren Teil der Seitenflächen des linken Bowtie-Flügels. Im vorderen Teil hingegen erfahren die Photoelektronen noch teilweise das elektrische Feld mit sehr großer Feldüberhöhung und besitzen somit auch eine höhere Energie. Elektronen, welche auf der Rückseite des linken oder auf den beiden Seitenflächen des rechten Bowtie-Flügels emittiert wurden, erreichen aufgrund von deren Emissionswinkel den TOF-Detektor nicht und sind aus diesem Grund hier nicht weiter aufgeführt.

Ähnlich zu Kap. 4.1 ergeben sich die höchsten Elektronendichten im Schnittpunkt dieser drei Beiträge. Dies ist in Abb. 4.10(b) und 4.11(a) zu sehen. Bezieht man die Sekundärelektronen in die Simulation mit ein, so ist aufgrund der geringen Intensität der Anteil mit negativer Auslenkung von Beitrag eins nicht mehr im Spektrum zu erkennen. Die anderen beiden Beiträge können auch in diesem Fall komplett ausgewertet werden, was in Abb. erkennbar 4.10(a) ist.

4.3 Diskresonator mit SiO_2 als Isolator

Abschließend werden mithilfe der entwickelten Simulationsumgebung zwei Diskresonatoren untersucht. Der erste von beiden ist dabei der für die Verifikation der Simulationsumgebung genutzte Resonator aus Kap. 3.1.7. Dieser ist in Abb. 4.13 nochmals dargestellt. Der untere Zylinder besteht aus Gold und besitzt

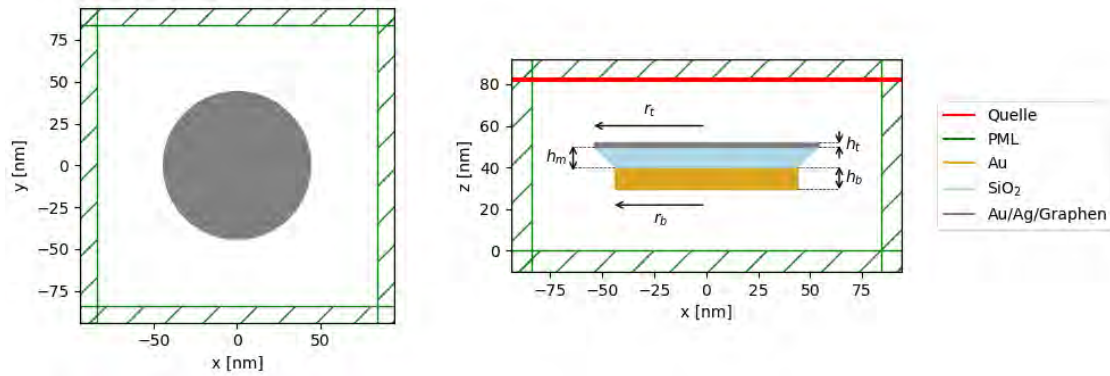


Abbildung 4.13: Schematische Darstellung der Simulationsumgebung des Diskresonators mitsamt dessen Abmessungen.

einen Radius von $r_b = 44 \text{ nm}$ und eine Höhe von $h_b = 10 \text{ nm}$. Der Kegelstumpf aus SiO_2 ist ebenfalls $h_m = 10 \text{ nm}$ hoch. Beim oberen Zylinder werden die verschiedenen Materialien Gold, Silber und Graphen getestet. In allen drei Fällen ist die Schicht $h_t = 1 \text{ nm}$ dick und der Radius beträgt $r_t = 54 \text{ nm}$.

Aufgrund der Geometrie werden verschiedenste Moden angeregt, wie in Kap. 3.1.7 diskutiert. Deren Superposition wirkt als plasmonisches Feld auf die Photoelektronen. Im Gegensatz zu den zwei bisher betrachteten Geometrien besitzt dieses eine räumlich komplexe Struktur. Diese ist exemplarisch für den Zeitschritt $t = 16.7 \text{ fs}$ in Abb. 4.14 dargestellt. Zudem ist in Abb. 4.15 die x-Komponente des elektrischen Feldes direkt neben der Kante des oberen Zylinders zu sehen. Hierbei sind deutliche Unterschiede zwischen den Materialien er-

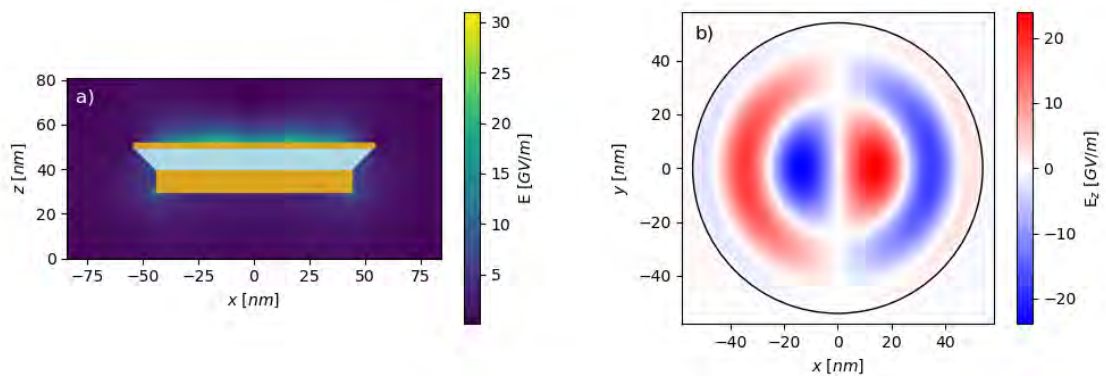


Abbildung 4.14: Graphische Darstellung des Betrags der elektrischen Feldstärke des Diskresonators zum Zeitpunkt $\tau = 6.7 \text{ fs}$ in der x-z-Ebene in (a) und des plasmonischen Nahfelds direkt über der oberen Disk in (b). Für die Abbildung wurde derjenige Diskresonator mit Gold als Material der oberen Disk gewählt.

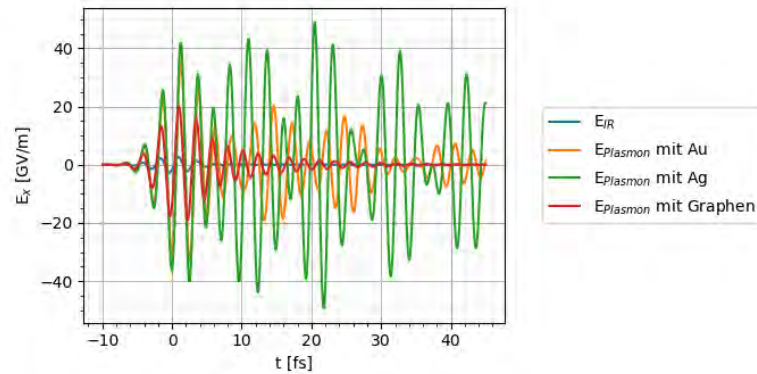


Abbildung 4.15: Graphische Darstellung der x-Komponente der elektrischen Feldstärke des einfallenden IR-Pulses und des plasmonischen Feldes in Abhängigkeit der Zeit und des Materials der oberen Disk. Als Position der Auswertung wurde der Punkt direkt neben der Mantelfläche der oberen Disk in der x-z-Ebene gewählt.

kennbar. Graphen besitzt dabei die kleinste Amplitude, sowie ein deutlich kürzeres Nachschwingverhalten als die beiden anderen Metalle. Silber besitzt die größte Feldverstärkung und ein sehr langes Nachschwingverhalten mit großen Amplituden, auch im Vergleich zu Gold. So wird hier die maximale Feldüberhöhung erst ungefähr 20 fs nach der Mitte des IR-Pulses erreicht.

Diese Ergebnisse sind auch in den in Abb. 4.16 abgebildeten Streaking-Spektren erkennbar. Für Graphen wurde die Simulation bereits bei $\tau = 19 \text{ fs}$ beendet, da zu diesem Zeitpunkt das plasmonische Feld bereits nahezu vollständig abgeklungen ist und somit auch keine Veränderung des Photoelektronenspektrums mehr erfolgt. Hierbei besitzt die Simulation mit Silber als oberes Diskmaterial die größte Streaking-Amplitude, gefolgt von Gold und Graphen. Das Nachschwingverhalten ist in allen drei Spektren gut erkennbar und auch die Nachschwingamplituden stimmen mit denjenigen der in Abb. 4.15 dargestellten elektrischen Felder überein.

Informationen über die zu Grunde liegenden plasmonischen Felder zu erlangen ist in diesem Fall jedoch deutlich schwieriger, da sich die Photoelektronen der räumlich separierten Einzelschwingung überlagern und so die oben abgebildeten komplexen Streaking-Spektren erzeugen. Die Information über das komplette plasmonische Feld ist jedoch sowohl orts- als auch zeitaufgelöst in diesem enthalten, wie Abb. 4.17 zeigt. Hierbei wurde analog zum vorherigen Kapitel die Anfangsposition mithilfe der Endposition und -geschwindigkeit abgeschätzt. Anschließend wurde für jede Anfangsposition die durchschnittliche Elektronen-

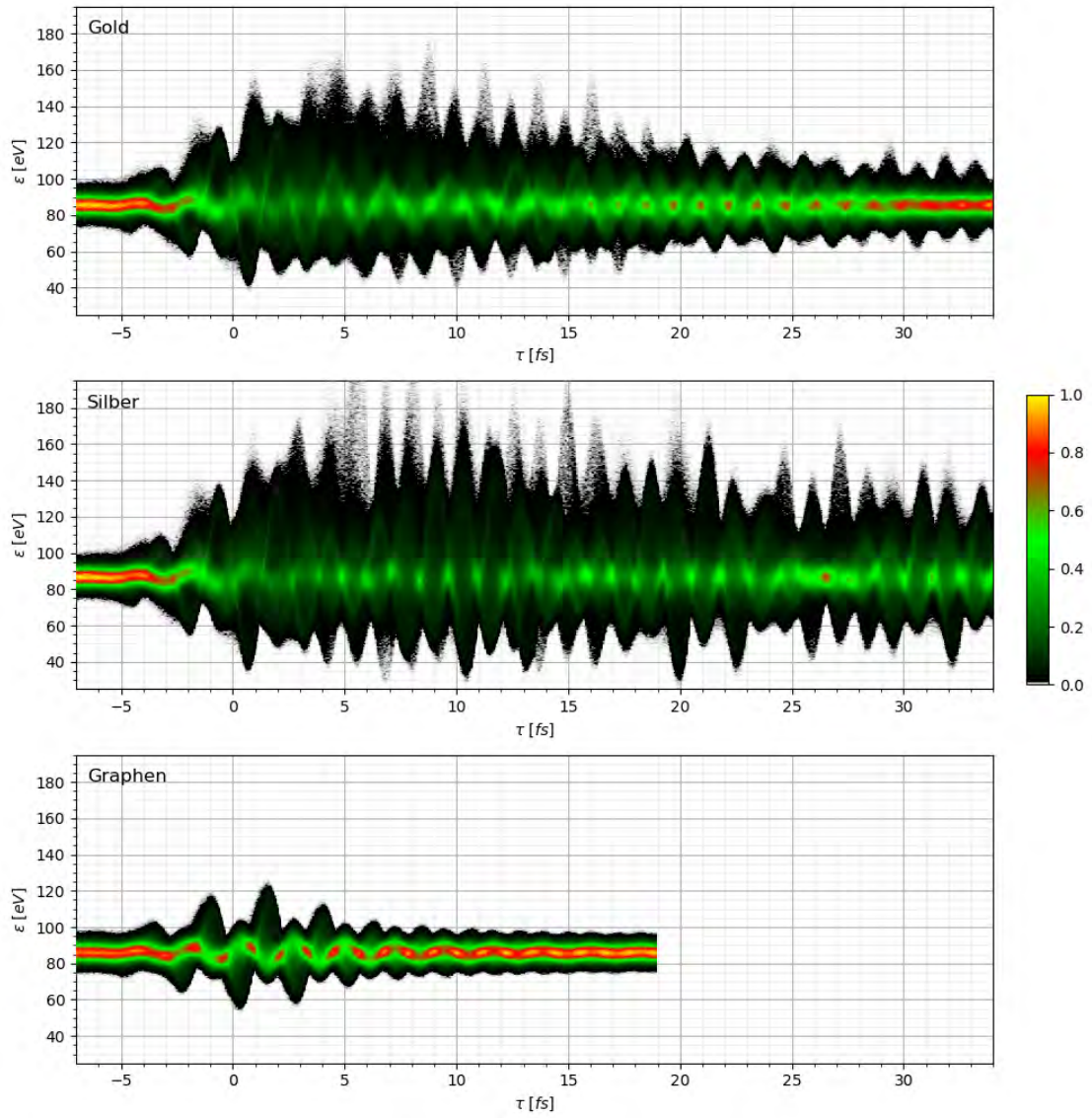


Abbildung 4.16: Streaking-Spektren ohne Sekundärelektronen der Diskresonatoren für die drei verschiedenen Materialien der oberen Disk.

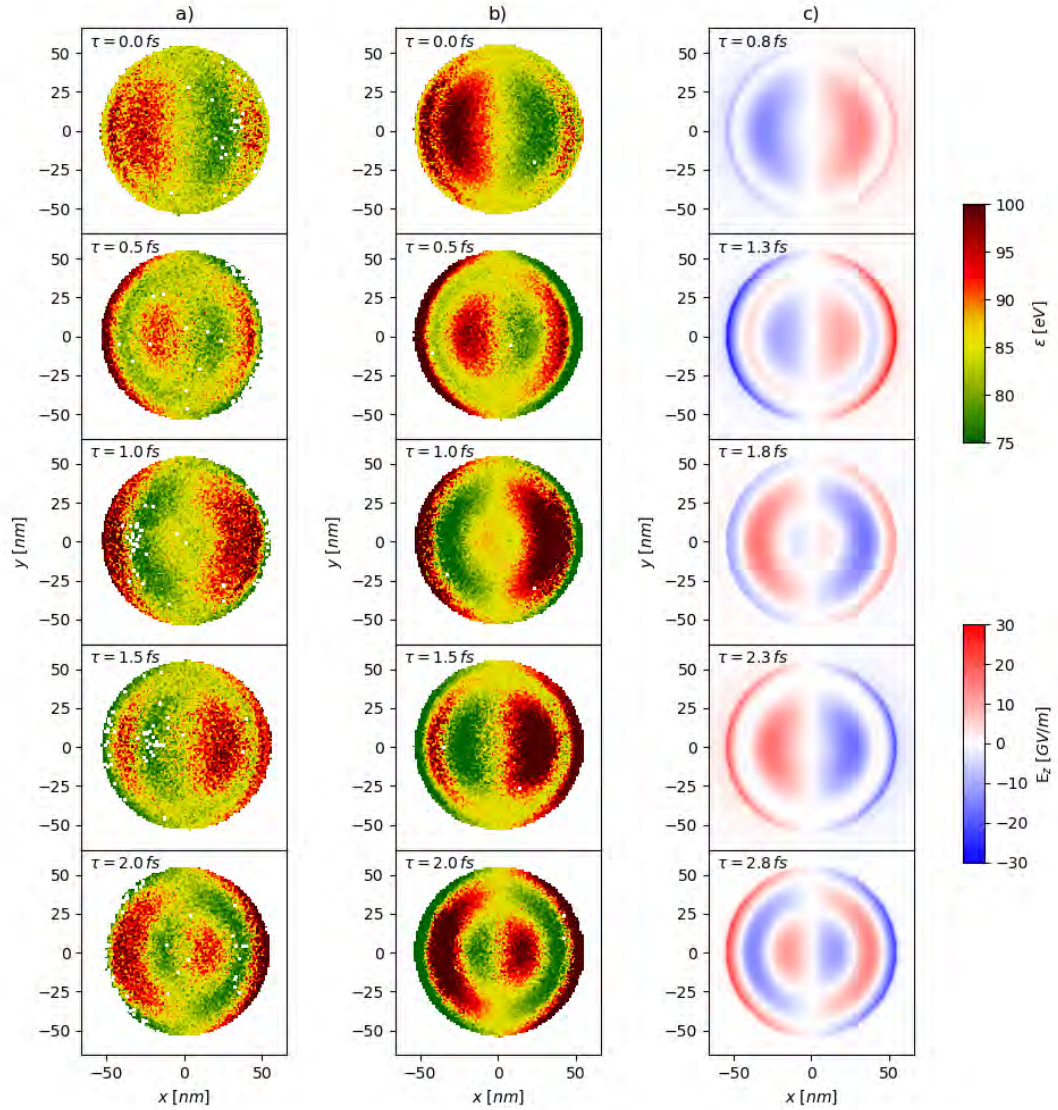


Abbildung 4.17: Gemittelte finale Elektronenenergie in Abhängigkeit der x-y-Projektion der approximierten Emissionsposition für die Simulation (a) mit Sekundärelektronen für $\varepsilon \geq 70$ eV, (b) ohne Sekundärelektronen und das entsprechende plasmonische Nahfeld der oberen Disk mit einem Zeitversatz von $\tau = 0.8$ fs in (c).

energie berechnet. Als Diskresonator wurde exemplarisch derjenige mit Gold gewählt. Dabei ist zu erkennen, dass die Photoelektronen mit einem Zeitversatz von etwa 0.8 fs das plasmonische Feld sehr gut widerspiegeln. Dies ist sowohl für die Simulation mit als auch ohne Sekundärelektronen gültig. Für ersteren Fall wurden zudem alle Elektronen mit einer Energie $\varepsilon < 70 \text{ eV}$ herausgefiltert, da bei den niederenergetischen Photoelektronen die Streaking-Amplitude abnimmt, wie in Kap. 4.1 diskutiert. Für diese Abbildung wurden im Gegensatz zur bisherigen Arbeit alle emittierten Elektronen betrachtet.

Über Teile des plasmonischen Feldes lassen sich auch direkt aus den Streaking-Spektren Informationen gewinnen. Verringert man den Akzeptanzwinkel des Detektors auf $\alpha_x = \pi/16$, so stammt ein Großteil der detektierten Photoelektronen aus der Mantelfläche der oberen Golddisk. Vergleicht man dieses Ergebnis mit den elektrischen Feldern an eben dieser Stelle aus Abb. 4.15, so stimmen diese bis auf einen Zeitversatz von erneut etwa 0.8 fs sehr gut überein. Dies ist in Abb. 4.18 dargestellt.

Abschließend soll der Einfluss der CEP auf das Streaking-Spektrum untersucht werden. Hierzu wird die CEP langsam von einer ursprünglichen Sinusschwingung auf eine Kosinusschwingung abgeändert. Die resultierenden Spektren sind in Abb. 4.19 dargestellt. Auch in diesen ist die Phasenverschiebung deutlich zu erkennen. Bis auf diese Zeitverschiebung sind jedoch kaum Unterschiede in den Amplituden der einzelnen Beiträge sichtbar. Dies lässt sich quantitativ mithilfe der zweidimensionalen normierten Kreuzkorrelation beschreiben. Als Referenzsignal wird dabei dasjenige mit einer CEP von $\phi_{CEP} = 0$ verwendet. Die Maximalwerte von diesen liegen dabei in allen Fällen über 99%, wie in Tab. 4.4 zu sehen. Über die Position dieses Maximalwertes t_{max} lässt sich zudem die Phasenverschiebung ϕ mithilfe der bekannten Wellenlänge λ_{IR} abschätzen.

Tabelle 4.4: Auswertung der CEP mittels der Streaking-Spektren mithilfe der Kreuzkorrelation und des Minimums nahe $\tau = 0$.

ϕ_{CEP}	Kreuzkorrelation		Minimum
	Maximum	Phasenverschiebung	Phasenverschiebung
-90°	99.48 %	-87.2°	-89.9°
-60°	99.65 %	-57.9°	-60.7°
-45°	99.74 %	-43.2°	-43.9°
-30°	99.86 %	-28.6°	-29.7°
0°	100.00 %	0.0°	0.0°

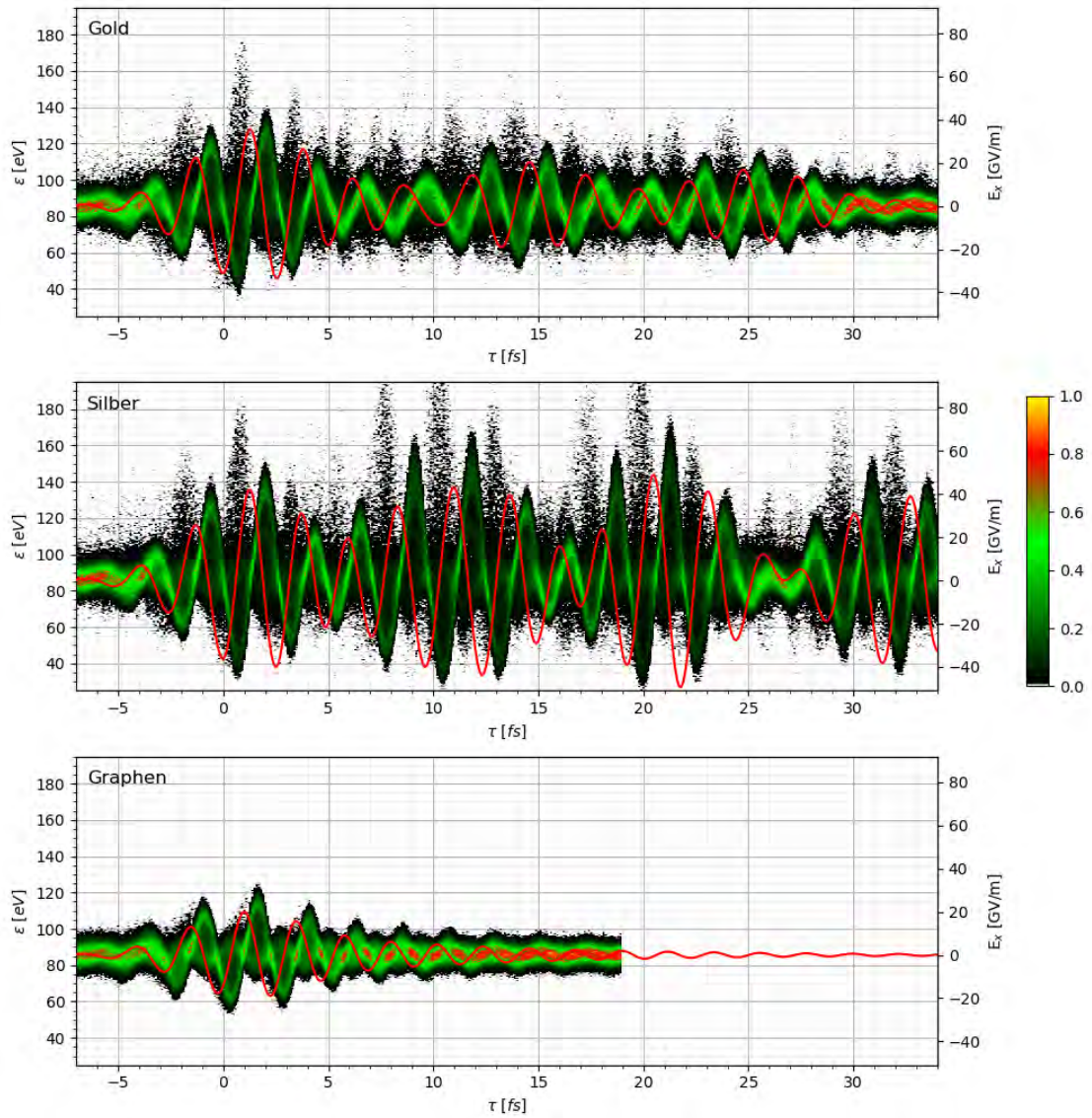


Abbildung 4.18: Streaking-Spektren der Photoelektronen mit einem Akzeptanzwinkel des TOF von $\alpha_x = \pi/16$ und zugehörigem plasmonischem Feld direkt neben der Mantelfläche der oberen Disk in der x-z-Ebene.

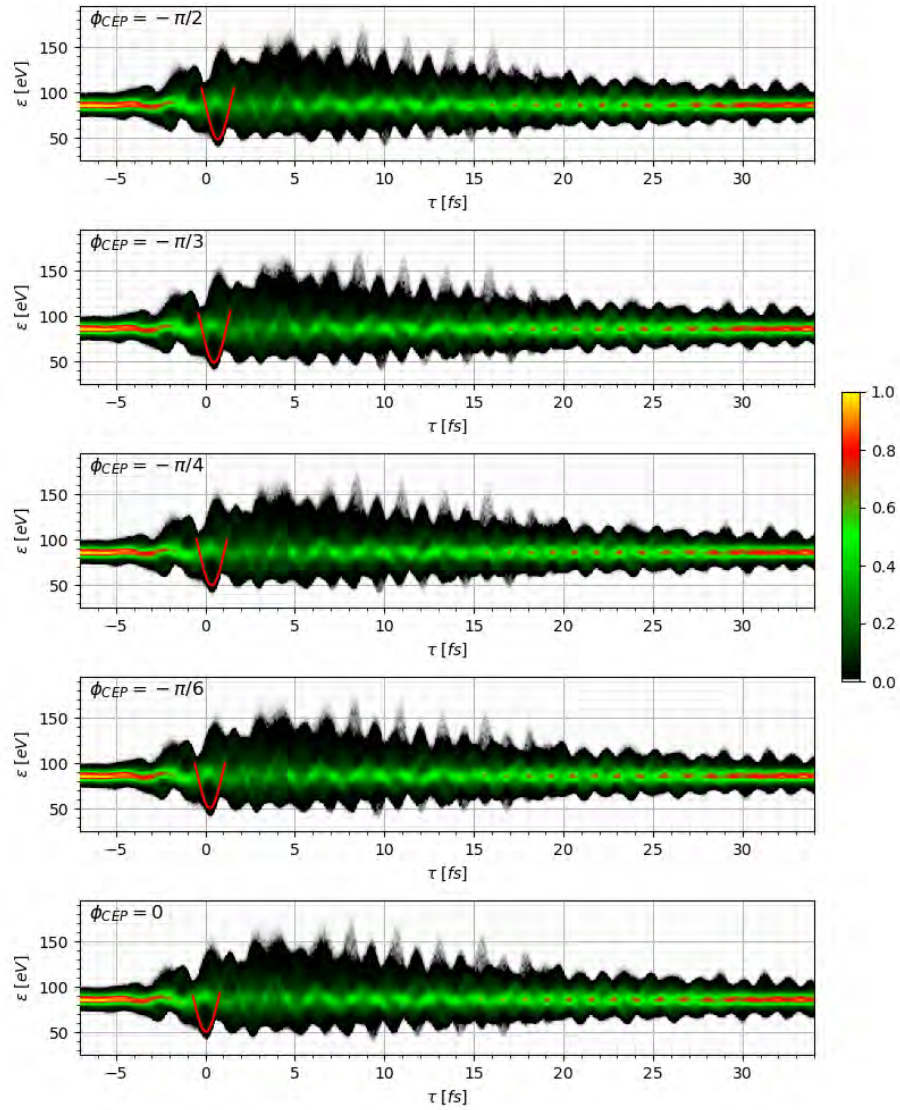


Abbildung 4.19: Streaking-Spektren des Diskresonators mit Gold als oberes Diskmaterial für verschiedene CEP-Werte des IR-Laserpulses mit Kennzeichnung des Minimums bei $\tau = 0$.

$$\phi = 2\pi \frac{c}{\lambda_{IR}} t_{max} \quad (4.1)$$

Hierbei wurde aufgrund der geringen zeitlichen Auflösung von 0.1 fs die Position und der Wert des Maximums quadratisch interpoliert. Wie ebenfalls in Tab. 4.4 dargestellt, liegt die maximale Abweichung zu ϕ_{CEP} bei 2.76° und bietet somit eine sehr gute Abschätzung der CEP. Eine weitere Möglichkeit bietet die Auswertung des Minimums nahe des Zeitversatzes $\tau = 0$, welches in 4.19 rot hervorgehoben ist. In diesem Fall handelt es sich um Elektronen, welche überwiegend von der Mantelfläche der oberen Golddisk emittiert wurden. Auch hier kann mithilfe von Gl. 4.1 die Phasenverschiebung berechnet werden. Die so erhaltenen Werte stimmen mit einer maximalen Abweichung von 1.09° etwas besser mit den CEP-Werten überein. Die Rekonstruktion der Phasenlage zweier Spektren untereinander ist somit sehr gut auswertbar.

4.4 Diskresonator mit h-BN als Isolator

Beim abschließend simulierten Diskresonator wurde das Augenmerk auf die reale Herstellbarkeit der Nanostruktur gelegt. Die untere Disk ist dabei, wie in Abb. 4.20 dargestellt, identisch zu derjenigen des im letzten Kapitel analysierten Diskresonators. Dieser aus Gold bestehende Zylinder besitzt einen Radius von $r_b = 44 \text{ nm}$ und eine Höhe von $h_b = 10 \text{ nm}$. Überzogen ist die Disk mit einer $d = 1 \text{ nm}$ dicken Schicht aus hexagonalem Bornitrid (h-BN), was in etwa vier Monolagen entspricht [69, 70]. Der obere Zylinder besteht aus Silber und besitzt analog zum vorangegangenen Kapitel eine Höhe von $h_t = 1 \text{ nm}$. Der Radius er-

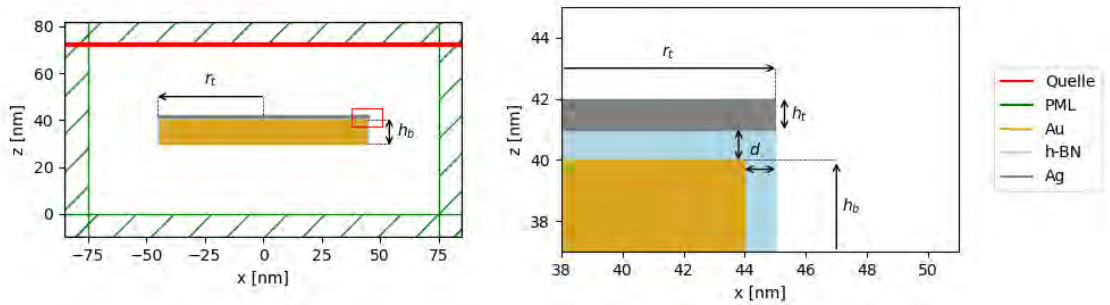


Abbildung 4.20: Schematische Darstellung der Simulationsumgebung des Diskresonators mitsamt dessen Abmessungen.

gibt sich aus demjenigen der unteren Disk und der Dicke der h-BN-Schicht und beträgt somit $r_t = 45 \text{ nm}$.

Der Fokus dieses Kapitels soll auf dem plasmonischen Nahfeld direkt über der oberen Silberdisk liegen. Dieses ist in Abhängigkeit des Zeitversatzes und der x-Position bei der Position $y = 0 \text{ nm}$ und $z = 42.5 \text{ nm}$ in Abb. 4.21 abgebildet. Am Anfang ist dabei eine deutlich Dipolschwingung zu erkennen. Ab etwa $\tau = 5 \text{ fs}$ entstehen schließlich komplexere Modenbilder. Die elektrische Feldstärke nimmt nach der Anregung immer weiter ab.

Der Vollständigkeit wegen wird zunächst kurz auf die Streaking-Spektren eingegangen, welche analog zu den vorherigen Analysen erstellt wurden. Diese sind in Abb. 4.22 dargestellt. Hierbei sind zwei Beiträge erkennbar. Ersterer mit größerer Amplitude stammt erneut von den Photoelektronen der Mantelfläche der oberen Disk und spiegelt somit die x-Komponente des plasmonischen Feldes an dieser Stelle wieder. Vergleicht man die Ergebnisse mit dem Diskresonator des vorangegangenen Kapitels aus Abb. 4.16, so fällt hier die geringere Streaking-Amplitude sowie ein deutlich kürzeres Nachschwingverhalten auf. Damit ist die Dämpfung des angeregten plasmonischen Feldes bei dieser Geometrie größer.

Für die Analyse des plasmonischen Nahfelds direkt über der oberen Disk wird der TOF-Detektor der Simulation auf der z-Achse platziert und der Akzeptanzwinkel auf $\alpha_z = \pi/8$ gesetzt. Aus diesem Grund werden im Folgenden nur diejenigen Photoelektronen betrachtet, von welchen der Geschwindigkeitsvektor einen Winkel kleiner dem Akzeptanzwinkel α_z mit der z-Achse einschließt. Das so erhaltene Streaking-Spektrum ist in Abb. 4.23(a) dargestellt. Wie bereits von Lupetti [19] gezeigt wurde, kann bei der Analyse von SPPs die Varianz des

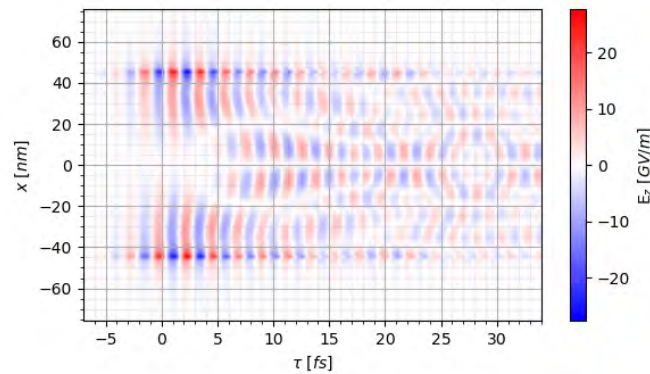


Abbildung 4.21: Plasmonisches Nahfeld der oberen Disk in Abhängigkeit des Zeitversatzes ausgewertet entlang der Linie parallel zur x-Achse bei $y = 0$.

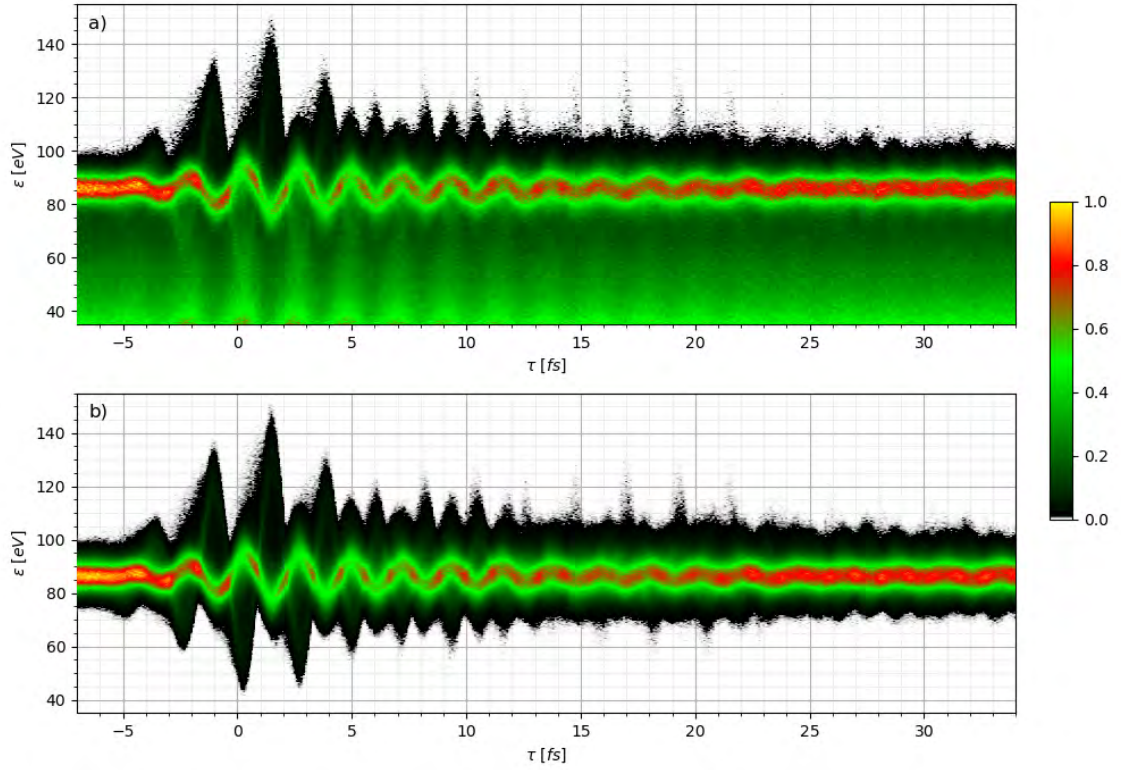


Abbildung 4.22: Streaking-Spektren des Diskresonators (a) mit und (b) ohne Sekundärelektronen.

Streaking-Spektrums als Maß für die zugrundeliegenden plasmonischen Felder genutzt werden. Überträgt man das Vorgehen auf die hier vorliegende Simulation des Diskresonators, so erhält man den in Abb. 4.23(b) gezeigten Graphen. Als Vergleichswert für das plasmonische Feld wurde dabei folgende Größe verwendet:

$$\iint_{r < 45 \text{ nm}} \left(\int_{\tau}^{\infty} E_z(x, y, t) e^{-0.3 \text{ fs}^{-1}(t-\tau)} dt \right)^2 dx dy \quad (4.2)$$

Der Integrand entspricht hierbei in etwa dem elektrischen Feld, welches auf ein sich mit konstanter Geschwindigkeit senkrecht nach oben bewegendes Elektron wirkt. Dieser Wert wird mittels des Doppelintegrals über die gesamte obere Disk aufsummiert. Der Faktor 0.3 fs^{-1} ergibt sich aus der durchschnittlichen Geschwindigkeit der Photoelektronen von $5.22 \frac{\text{nm}}{\text{fs}}$ und der Abklingkonstante des elektrischen Feldes in z-Richtung, welche aus den Simulationen entnommen wurde und bei 17.4 nm liegt. Diese Näherung ist aufgrund des geringen Akzeptanzwinkels des TOF-Detektors möglich. Hierdurch werden nur Photoelektro-

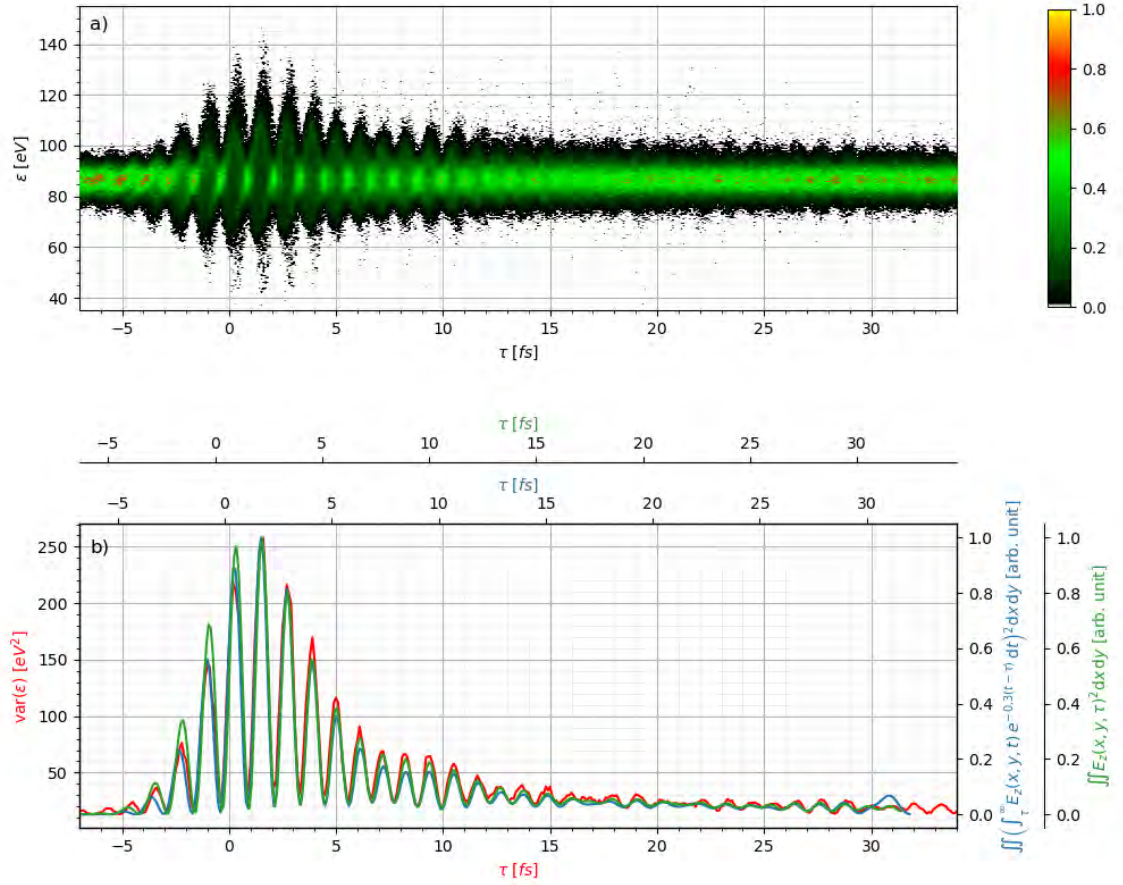


Abbildung 4.23: (a) Streaking-Spektrum für einen Akzeptanzwinkel des TOF-Detektors von $\alpha_z = \pi/8$ und (b) Vergleich der Varianz dieses Spektrums mit verschiedenen Transformationen des plasmonischen Nahfelds der oberen Platte.

nen berücksichtigt, deren Geschwindigkeitsvektor näherungsweise in positive z -Richtung zeigt. Eine weitere Verringerung des Akzeptanzwinkels ist mit den aktuellen Simulationsparametern jedoch nicht möglich, da aufgrund der Dipolverteilung in der Anregung der Elektronen (Gl. 3.28) ein Großteil von diesen einen zur x -Achse gerichteten Geschwindigkeitsvektor besitzt. Somit würden aufgrund der durchgeführten Monte-Carlo-Simulation die statistischen Fehler überwiegen.

Wie in Abb. 4.23(b) zu sehen, spiegelt die in Gl. 4.2 berechnete Approximation die Varianz bis auf einen Zeitversatz von etwa 0.2 fs gut wieder. Im Einklang mit den Ergebnissen des vorangegangenen Diskresonators stimmen insbesondere ab $\tau = 1 \text{ fs}$ auch das räumlich integrierte Quadrat der elektrischen Feldstärke $\int \int E_z(x, y, \tau)^2 dx dy$ mit einem Zeitversatz von 0.65 fs mit der Varianz des Streaking-Spektrums überein. Dies ist ebenfalls in Abb. 4.23(b) aufge-

tragen. Vor $\tau = 1 \text{ fs}$ sind die Amplituden der gemittelten elektrischen Feldstärke etwas höher als diejenigen der Varianz. Somit lässt sich mithilfe der Varianz indirekt eine Aussage über das räumlich gemittelte plasmonische Nahfeld treffen. Eine räumliche Auflösung von diesem ist auf diese Weise jedoch nicht möglich. Einen vielversprechenden Ansatz bieten hierbei die am Anfang des Kapitels bereits erwähnten VMI-Detektoren, mit welchen eine Messung der drei Impulskomponenten der Photoelektronen im Verhältnis zueinander möglich ist, oder die Kombination von Photoemissions-Elektronenmikroskopie (PEEM, engl. *photoemission electron microscopy*) mit der eben verwendeten Attosekunden-Streakingspektroskopie [18]. Dieser Ansatz wird im folgenden Ausblick noch etwas genauer ausgeführt.

5 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde eine Simulationsumgebung entwickelt, mit welcher Attosekunden-Streakingspektroskopie Experimente beliebiger Nanostrukturen simuliert werden können. Hierfür wurde der Prozess in die Simulation der mittels des IR-Puls angeregten plasmonischen Felder, die Modellierung der durch den XUV-Puls hervorgerufenen Photoemission und die Lösung der Bewegungsgleichung dieser Photoelektronen im elektromagnetischen Feld aus dem ersten Schritt aufgeteilt. Dabei wurde sowohl auf die theoretischen Grundlagen und angewandten Modelle als auch auf deren programmiertechnische Umsetzung in der Simulation eingegangen. Die Validität der Ergebnisse wurde anhand der Simulation einer Nanogoldkugel überprüft, bei der eine ausgezeichnete Übereinstimmung mit der Simulation von Saydanzad et al. [41] erreicht wurde. Anhand der Untersuchung verschiedener Nanostrukturen mit unterschiedlichen Materialien wurde die Variabilität der Simulationsumgebung gezeigt.

Zudem wurde dargelegt, dass anhand der finalen Simulationsergebnisse die Emissionsposition der Photoelektronen gut approximiert werden kann. Außerdem sind einzelne Anteile des plasmonischen Feldes mit einem gewissen Zeitversatz direkt aus dem Streaking-Spektrum extrahierbar. Dies ist beispielsweise bei demjenigen der Mantelfläche der oberen Disk des ersten simulierten Diskresonators der Fall. Auch die Informationen von ortsabhängigen plasmonischen Nahfeldern lassen sich sowohl orts- als auch zeitaufgelöst aus den Simulationsdaten entnehmen. Aus den Streaking-Spektren ist jedoch aufgrund der Überlagerung der verschiedenen Anteile lediglich eine ortsgemittelte Aussage möglich, beispielsweise mittels der Varianz des Spektrums. Der Einfluss der CEP des treibenden Laserpulses hingegen ist direkt in den Streaking-Spektren erkennbar und kann mit wenigen Grad Abweichung direkt aus diesen extrahiert werden.

In die Simulationsumgebung können in Zukunft weitere physikalische Effekte mit eingepflegt werden. So wurde beispielsweise das elektromagnetische Feld in der Geometrie während der Photoemission vernachlässigt. Die entsprechenden Daten stehen bereits durch die numerische Simulation zur Verfügung und müssten lediglich eingebunden werden. Des Weiteren werden bei diesem Prozess aktuell nur die Leitungsbandelektronen betrachtet. Mithilfe der Einbeziehung der gebundenen Elektronen könnten im Emissionsspektrum ebenfalls die charakteristischen Peaks erzeugt werden. Zudem wurde im aktuellen Modell zur Berechnung des DIIMFP das Drude-Modell verwendet. Durch die Verwendung kom-

plexerer quantenmechanischer Modelle, wie beispielsweise der dielektrischen Funktion von Mermin [71], können auch in diesem Bereich Ergebnisse erzielt werden, welche die experimentellen Daten besser widerspiegeln. Auch bei der Lösung der Bewegungsgleichung wurde in dieser Arbeit ein rein klassisches Modell verwendet. Wie exemplarisch von Li et al. [72] demonstriert, werden durch die Verwendung quantenmechanischer Modelle für derartige Attosekunden-Streaking-Experimente leicht abweichende Phasenlagen und Amplituden erzielt.

Mit der hier vorliegenden Simulationsumgebung sind zudem weiterführende Analysen möglich. Wie bereits kurz im vorangegangenen Kapitel angesprochen, ist die Simulation von Messdaten anderer Detektoren möglich, wie beispielsweise eines TOF-PEEM-Detektors oder eines VMI-Detektors. Bei Ersterem handelt es sich um einen orts aufgelösten TOF-Sensor. Dabei wird von jedem Bildpunkt auf dem TOF-PEEM ein Streaking-Spektrogramm erstellt, welches ein kleines Volumen auf der Probenoberfläche abbildet. Hierbei wurden von Lin et al. [73] räumliche Auflösungen von 25 nm erreicht. Durch eine Verbesserung dieser Auflösung wäre in Zukunft somit eine vollständig zeit- und orts aufgelöste Messung des plasmonischen Nahfelds der in dieser Arbeit diskutierten Geometrien realisierbar.

Literatur

- [1] I. Freestone u. a. „The Lycurgus Cup — A Roman nanotechnology“. In: *Gold Bulletin* 40.4 (2007), S. 270–277. ISSN: 0017-1557. DOI: 10.1007/BF03215599.
- [2] A. Sommerfeld. „Über die Fortpflanzung elektrodynamischer Wellen längs eines Drahtes“. In: *Annalen der Physik und Chemie* 303.2 (1899), S. 233–290. ISSN: 00033804. DOI: 10.1002/andp.18993030202.
- [3] J. Zenneck. „Über die Fortpflanzung ebener elektromagnetischer Wellen längs einer ebenen Leiterfläche und ihre Beziehung zur drahtlosen Telegraphie“. In: *Annalen der Physik und Chemie* 328.10 (1907), S. 846–866. ISSN: 00033804. DOI: 10.1002/andp.19073281003.
- [4] S. Maier. *Plasmonics: Fundamentals and applications*. New York, NY: Springer, 2010. ISBN: 978-0-387-37825-1.
- [5] D. Bohm und D. Pines. „A Collective Description of Electron Interactions: III. Coulomb Interactions in a Degenerate Electron Gas“. In: *Physical Review* 92.3 (1953), S. 609–625. ISSN: 0031-899X. DOI: 10.1103/PhysRev.92.609.
- [6] E. Kretschmann. „Untersuchungen zur Anregung und Streuung von Oberflächenplasmaschwingungen an Silberschichten“. Diss. Hamburg: Universität Hamburg, 1972.
- [7] A. Otto. „Spectroscopy of surface polaritons by attenuated total reflection“. In: *Optical Properties of Solids, New Developments* (1976), S. 677–727.
- [8] M. Brongersma und V. Shalaev. „Applied physics. The case for plasmonics“. In: *Science (New York, N.Y.)* 328.5977 (2010), S. 440–441. DOI: 10.1126/science.1186905.
- [9] J. Takahara u. a. „Guiding of a one-dimensional optical beam with nanometer diameter“. In: *Optics letters* 22.7 (1997), S. 475–477. ISSN: 0146-9592. DOI: 10.1364/OL.22.000475.
- [10] T. Ebbesen u. a. „Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays“. In: *Nature* 391.6668 (1998), S. 667–669. ISSN: 0028-0836. DOI: 10.1038/35570.
- [11] J. Pendry. „Negative refraction makes a perfect lens“. In: *Physical review letters* 85.18 (2000), S. 3966–3969. DOI: 10.1103/PhysRevLett.85.3966.

- [12] D. Peer u. a. „Nanocarriers as an emerging platform for cancer therapy“. In: *Nature nanotechnology* 2.12 (2007), S. 751–760. DOI: 10.1038/nnano.2007.387.
- [13] X. Huang u. a. „Cancer cell imaging and photothermal therapy in the near-infrared region by using gold nanorods“. In: *Journal of the American Chemical Society* 128.6 (2006), S. 2115–2120. ISSN: 0002-7863. DOI: 10.1021/ja057254a.
- [14] X. Qian u. a. „In vivo tumor targeting and spectroscopic detection with surface-enhanced Raman nanoparticle tags“. In: *Nature biotechnology* 26.1 (2008), S. 83–90. DOI: 10.1038/nbt1377.
- [15] L. Hirsch u. a. „Nanoshell-mediated near-infrared thermal therapy of tumors under magnetic resonance guidance“. In: *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 100.23 (2003), S. 13549–13554. ISSN: 0027-8424. DOI: 10.1073/pnas.2232479100.
- [16] W. Cai, J. White und M. Brongersma. „Compact, high-speed and power-efficient electrooptic plasmonic modulators“. In: *Nano letters* 9.12 (2009), S. 4403–4411. DOI: 10.1021/nl902701b.
- [17] L. Tang u. a. „Nanometre-scale germanium photodetector enhanced by a near-infrared dipole antenna“. In: *Nature Photonics* 2.4 (2008), S. 226–229. ISSN: 1749-4885. DOI: 10.1038/nphoton.2008.30.
- [18] U. Thumm u. a. „Attosecond Physics: Attosecond Streaking Spectroscopy of Atoms and Solids“. In: *Photonics*. Hrsg. von D. Andrews. Bd. 267. Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc, 2015, S. 387–441. ISBN: 9781119009719. DOI: 10.1002/9781119009719.ch13.
- [19] M. Lupetti. „Plasmonische Generation von Attosekundenpulsen und Attosekundenabbildung von Oberflächenplasmonen“. Diss. München: Ludwig-Maximilians-Universität München, 2015. URL: <http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:bvb:19-183678>.
- [20] J. Hengster. „Towards ultrafast time-resolved experiments with nanoscale objects and surfaces“. Diss. Hamburg: Universität Hamburg, 2016.
- [21] M. Iwanaga. *Plasmonic resonators: Fundamentals, advances, and applications*. Singapore: Pan Stanford Publishing Pte. Ltd, 2016. ISBN: 9781315364711. DOI: 10.1201/9781315364711. URL: <https://www.taylorfrancis.com/books/9781315364711>.

- [22] S. Chew. „Photoemission electron microscopy for nanoscale imaging and attosecond control of light-matter interaction at metal surfaces“. Diss. München: Ludwig-Maximilians-Universität München, 2018. DOI: 10.5282/EDOC.22169.
- [23] N. Ashcroft und N. Mermin. *Solid state physics*. Internat. ed., 21. print. Fort Worth: Saunders College Publ, 1976. ISBN: 0030839939.
- [24] B. Förg. „Attosecond dynamics of collective electron effects in nanostructures and molecules“. Diss. München: Ludwig-Maximilians-Universität München, 2018. DOI: 10.5282/EDOC.21745.
- [25] E. Kretschmann und H. Raether. „Notizen: Radiative Decay of Non Radiative Surface Plasmons Excited by Light“. In: *Zeitschrift für Naturforschung A* 23.12 (1968), S. 2135–2136. ISSN: 0932-0784. DOI: 10.1515/zna-1968-1247.
- [26] A. Otto. „Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection“. In: *Zeitschrift für Physik A Hadrons and nuclei* 216.4 (1968), S. 398–410. ISSN: 0939-7922. DOI: 10.1007/BF01391532.
- [27] M. Rodrigues u. a. „Gas Sensors Based on Localized Surface Plasmon Resonances: Synthesis of Oxide Films with Embedded Metal Nanoparticles, Theory and Simulation, and Sensitivity Enhancement Strategies“. In: *Applied Sciences* 11.12 (2021), S. 5388. DOI: 10.3390/app11125388.
- [28] F. Krausz und M. Ivanov. „Attosecond physics“. In: *Reviews of Modern Physics* 81.1 (2009), S. 163–234. ISSN: 0034-6861. DOI: 10.1103/RevModPhys.81.163.
- [29] Massachusetts Institute of Technology, Hrsg. *MEEP Documentation*. 1.08.2022. URL: <https://meep.readthedocs.io/en/latest/> (besucht am 02.08.2022).
- [30] A. Taflove, A. Oskooi und S. Johnson, Hrsg. *Advances in FDTD computational electrodynamics: Photonics and nanotechnology*. Artech House antennas and propagation series. Boston und London: Artech House, 2013.
- [31] A. Oskooi u. a. „Meep: A flexible free-software package for electromagnetic simulations by the FDTD method“. In: *Computer Physics Communications* 181.3 (2010), S. 687–702. ISSN: 00104655. DOI: 10.1016/j.cpc.2009.11.008.

- [32] J. Hengster und T. Uphues. „Coherent control of nanoplasmonic surface-volume mode coupling in gold-silica-gold thin disk resonators“. In: *Optics express* 25.10 (2017), S. 11347–11358. DOI: 10.1364/OE.25.011347.
- [33] M. Baas. *Getting started with MEEP: simple electric field simulations in python*. 22.12.2019. URL: <https://rf5.github.io/2019/12/22/meep-intro.html> (besucht am 02.08.2022).
- [34] A. Oskooi und S. Johnson. *Electromagnetic Wave Source Conditions*. 2013. URL: <https://arxiv.org/pdf/1301.5366>.
- [35] *scipy.optimize.curve_fit: SciPy v1.9.0 Manual*. 29.07.2022. URL: https://docs.scipy.org/doc/scipy/reference/generated/scipy.optimize.curve_fit.html (besucht am 09.08.2022).
- [36] L. Gao, F. Lemarchand und M. Lequime. „Exploitation of multiple incidences spectrometric measurements for thin film reverse engineering“. In: *Optics express* 20.14 (2012), S. 15734–15751. DOI: 10.1364/OE.20.015734.
- [37] S. Lee u. a. „Refractive Index Dispersion of Hexagonal Boron Nitride in the Visible and Near-Infrared“. In: *physica status solidi (b)* 256.6 (2019), S. 1800417. ISSN: 0370-1972. DOI: 10.1002/pssb.201800417.
- [38] P. Johnson und R. Christy. „Optical Constants of the Noble Metals“. In: *Physical Review B* 6.12 (1972), S. 4370–4379. ISSN: 0556-2805. DOI: 10.1103/PhysRevB.6.4370.
- [39] B. Song u. a. „Broadband optical properties of graphene and HOPG investigated by spectroscopic Mueller matrix ellipsometry“. In: *Applied Surface Science* 439 (2018), S. 1079–1087. ISSN: 01694332. DOI: 10.1016/j.apsusc.2018.01.051.
- [40] S. Johnson. *Coordinate Transformation & Invariance in Electromagnetism*. 2010. URL: <https://math.mit.edu/~stevenj/18.369/coordinate-transform.pdf> (besucht am 04.08.2022).
- [41] E. Saydanzad, J. Li und U. Thumm. „Characterization of induced nanoplasmonic fields in time-resolved photoemission: A classical trajectory approach applied to gold nanospheres“. In: *Physical Review A* 95.5 (2017). ISSN: 2469-9926. DOI: 10.1103/PhysRevA.95.053406.
- [42] K. L. Jensen u. a. „Multiple scattering effects on quantum efficiency and response time for cesiated metal photocathodes“. In: *Journal of Applied Physics* 110.3 (2011), S. 034504. ISSN: 0021-8979. DOI: 10.1063/1.3610397.

- [43] M. Kolonko, Hrsg. *Stochastische Simulation: Grundlagen, Algorithmen und Anwendungen*. Springer eBook Collection. Wiesbaden: Vieweg+Teubner, 2008. ISBN: 978-3-8351-0217-0. DOI: 10.1007/978-3-8348-9290-4.
- [44] A. Amann und U. Müller-Herold. *Offene Quantensysteme*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2011. ISBN: 978-3-642-05186-9. DOI: 10.1007/978-3-642-05187-6.
- [45] O. Y. Ridzel, V. Astašauskas und W. S. M. Werner. „Low energy (1–100 eV) electron inelastic mean free path (IMFP) values determined from analysis of secondary electron yields (SEY) in the incident energy range of 0.1–10 keV“. In: *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* 241.2 (2020), S. 146824. ISSN: 03682048. DOI: 10.1016/j.elspec.2019.02.003.
- [46] W. S. M. Werner. „Electron transport in solids for quantitative surface analysis“. In: *Surface and Interface Analysis* 31.3 (2001), S. 141–176. ISSN: 0142-2421. DOI: 10.1002/sia.973.
- [47] F. Salvat, A. Jablonski und C. J. Powell. „elsepa—Dirac partial-wave calculation of elastic scattering of electrons and positrons by atoms, positive ions and molecules“. In: *Computer Physics Communications* 165.2 (2005), S. 157–190. ISSN: 00104655. DOI: 10.1016/j.cpc.2004.09.006.
- [48] J. C. Ashley, C. J. Tung und R. H. Ritchie. „Electron inelastic mean free paths and energy losses in solids“. In: *Surface Science* 81.2 (1979), S. 409–426. ISSN: 00396028. DOI: 10.1016/0039-6028(79)90109-2.
- [49] M. Vos und R. L. Grande. „Simple model dielectric functions for insulators“. In: *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 104.2 (2017), S. 192–197. ISSN: 00223697. DOI: 10.1016/j.jpcs.2016.12.015.
- [50] M. Vos und P. L. Grande. „Extracting the dielectric function from high-energy REELS measurements“. In: *Surface and Interface Analysis* 49.9 (2017), S. 809–821. ISSN: 0142-2421. DOI: 10.1002/sia.6227.
- [51] B. Henke, E. Gullikson und J. Davis. „X-Ray Interactions: Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at $E = 50\text{--}30,000$ eV, $Z = 1\text{--}92$ “. In: *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 54.2 (1993), S. 181–342. ISSN: 0092640X. DOI: 10.1006/adnd.1993.1013.

- [52] D. Attwood und A. Sakdinawat. *X-rays and extreme ultraviolet radiation: Principles and applications*. Second edition. Cambridge: Cambridge University Press, 2016. ISBN: 9781107477629. DOI: 10.1017/CBO9781107477629. URL: <http://ebooks.cambridge.org/ebook.jsf?bid=CBO9781107477629>.
- [53] R. Shimizu und Z. J. Ding. „Monte Carlo modelling of electron-solid interactions“. In: *Reports on Progress in Physics* 55.4 (1992), S. 487–531. DOI: 10.1088/0034-4885/55/4/002.
- [54] Z. J. Ding, X. D. Tang und R. Shimizu. „Monte Carlo study of secondary electron emission“. In: *Journal of Applied Physics* 89.1 (2001), S. 718–726. ISSN: 0021-8979. DOI: 10.1063/1.1331645.
- [55] A. Naumann. *Skript zur Vorlesung Numerical Methods for ODEs*. Chemnitz, 2021. URL: https://www.tu-chemnitz.de/mathematik/part_dgl/teaching/WS2020_Numerik_von_ODEs/WS2020_Numerik_ODEs_st.pdf (besucht am 31.05.2022).
- [56] P. Dombi und P. R  cz. „Ultrafast monoenergetic electron source by optical waveform control of surface plasmons“. In: *Optics express* 16.5 (2008), S. 2887–2893. DOI: 10.1364/OE.16.002887.
- [57] M. Kitzler und S. Gr  fe. *Ultrafast Dynamics Driven by Intense Light Pulses*. Bd. 86. Cham: Springer International Publishing, 2016. ISBN: 978-3-319-20172-6. DOI: 10.1007/978-3-319-20173-3.
- [58] P. Dombi, P. R  cz und B. B  di. „Surface plasmon enhanced electron acceleration with few-cycle laser pulses“. In: *Laser and Particle Beams* 27.2 (2009), S. 291–296. ISSN: 0263-0346. DOI: 10.1017/S0263034609000391.
- [59] D. Liu u. a. „Fermi-Level Dependence of the Chemical Functionalization of Graphene with Benzoyl Peroxide“. In: *The Journal of Physical Chemistry C* 121.19 (2017), S. 10546–10551. ISSN: 1932-7447. DOI: 10.1021/acs.jpcc.7b01520.
- [60] P. Tipler und R. Llewellyn. *Modern physics*. 3. ed., 2. print. New York: Freeman, 2000. ISBN: 1572591641.
- [61] S. Song u. a. „Determination of work function of graphene under a metal electrode and its role in contact resistance“. In: *Nano letters* 12.8 (2012), S. 3887–3892. DOI: 10.1021/nl300266p.

- [62] S. Kasap. *Principles of electronic materials and devices*. 2nd ed. New York und London: McGraw-Hill, 2002. ISBN: 978-0071122368.
- [63] A. AlZahrani und G. Srivastava. „Graphene to graphite: electronic changes within DFT calculations“. In: *Brazilian Journal of Physics* 39.4 (2009). DOI: 10.1590/S0103-97332009000600013.
- [64] Lide D., Hrsg. *CRC handbook of chemistry and physics: A ready-reference book of chemical and physical data*. 84th ed. Boca Raton: CRC Press, 2003. ISBN: 0-8493-0484-9.
- [65] L. Torrisi u. a. „Measurements on Five Characterizing Properties of Graphene Oxide and Reduced Graphene Oxide Foils“. In: *physica status solidi (a)* 219.6 (2022), S. 2100628. ISSN: 1862-6300. DOI: 10.1002/pssa.202100628.
- [66] F. Süßmann und M. Kling. „Attosecond nanoplasmonic streaking of localized fields near metal nanospheres“. In: *Physical Review B* 84.12 (2011). ISSN: 0556-2805. DOI: 10.1103/PhysRevB.84.121406.
- [67] J. Li und U. Thumm. „Attosecond plasmonic streaking from gold nanospheres“. In: *Journal of Physics: Conference Series* 635.10 (2015), S. 102003. ISSN: 1742-6588. DOI: 10.1088/1742-6596/635/10/102003.
- [68] L. Lin und Y. Zheng. „Optimizing plasmonic nanoantennas via coordinated multiple coupling“. In: *Scientific reports* 5 (2015), S. 14788. DOI: 10.1038/srep14788.
- [69] A. Crovetto u. a. „Nondestructive Thickness Mapping of Wafer-Scale Hexagonal Boron Nitride Down to a Monolayer“. In: *ACS applied materials & interfaces* 10.30 (2018), S. 25804–25810. DOI: 10.1021/acsami.8b08609.
- [70] D. Wickramaratne, L. Weston und C. van de Walle. „Monolayer to Bulk Properties of Hexagonal Boron Nitride“. In: *The Journal of Physical Chemistry C* 122.44 (2018), S. 25524–25529. ISSN: 1932-7447. DOI: 10.1021/acs.jpcc.8b09087.
- [71] N. Mermin. „Lindhard Dielectric Function in the Relaxation-Time Approximation“. In: *Physical Review B* 1.5 (1970), S. 2362–2363. ISSN: 0556-2805. DOI: 10.1103/PhysRevB.1.2362.

- [72] J. Li, E. Saydanzad und U. Thumm. „Retrieving plasmonic near-field information: A quantum-mechanical model for streaking photoelectron spectroscopy of gold nanospheres“. In: *Physical Review A* 94.5 (2016). ISSN: 2469-9926. DOI: 10.1103/PhysRevA.94.051401.
- [73] J. Lin u. a. „Time of flight-photoemission electron microscope for ultrahigh spatiotemporal probing of nanoplasmonic optical fields“. In: *Journal of physics. Condensed matter : an Institute of Physics journal* 21.31 (2009), S. 314005. ISSN: 0953-8984. DOI: 10.1088/0953-8984/21/31/314005.
- [74] *scipy.interpolate.RegularGridInterpolator: SciPy v1.8.1 Manual*. 20.05.2022. URL: <https://docs.scipy.org/doc/scipy/reference/generated/scipy.interpolate.RegularGridInterpolator.html> (besucht am 02.06.2022).
- [75] *Numba: A High Performance Python Compiler*. 24.05.2021. URL: <https://numba.pydata.org/> (besucht am 02.06.2022).

A 4D-Interpolationsalgorithmus

In diesem Kapitel soll der verwendete 4D-Interpolationsalgorithmus näher besprochen werden. So bietet das Package SciPy mit dem *RegularGridInterpolator* bereits eine Klasse, welche in beliebig vielen Dimensionen auf einem regelmäßigen Netz linear interpolieren kann [74]. Hierbei besteht jedoch das Problem, dass diese Klasse bei jedem Aufruf der entsprechenden Methode für jeden zu interpolierenden Punkt von Grund auf den interpolierten Wert berechnet. Bei einer großen Anzahl an Punkten ist dies jedoch rechen- und zeitintensiv.

Allgemein wird bei der 4D-Interpolation zwischen den Punkten des regelmäßigen Netzes der interpolierte Wert mithilfe eines quadrilinearen Polynoms berechnet.

$$f(x) = \sum_{i=0}^1 \sum_{j=0}^1 \sum_{k=0}^1 \sum_{l=0}^1 a_{ijkl} x_1^i x_2^j x_3^k x_4^l \quad (\text{A.1})$$

Dabei sind x_1 bis x_4 die Koordinaten der vier Dimensionen, d.h. für den Fall dieser Arbeit t, r_x, r_y und r_z . Die 16 Koeffizienten a_{ijkl} können für jedes Netzelement über die 16 Eckpunkte des vierdimensionalen Hyperquaders aus diesen berechnet werden. Für eine große Anzahl an zu interpolierenden Punkten ist es somit schneller, die Koeffizienten aller Gitterpunkte im Voraus zu berechnen und auf Grundlage von diesen den interpolierten Wert zu ermitteln.

Hierzu wurden die Koordinaten jedes Netzelements und jeder Dimension so normiert, dass jeweils ein Einheitshyperwürfel entsteht.

$$x'_i = \frac{x_i - x_{i0}}{x_{i1} - x_{i0}} \quad (\text{A.2})$$

Hierbei sind x_{i0} und x_{i1} die Koordinaten des Eckpunktes der i -ten Dimension. Setzt man die 16 bekannten Werte der Eckpunkte des Einheitshyperwürfel $f(x_{1i}, x_{2j}, x_{3k}, x_{4l}) = f_{ijkl}$ in Gl. A.1 ein, so ergibt sich durch diese Normierung für alle Netzelemente dasselbe Gleichungssystem.

(A.3)

Somit muss für jeden zu interpolierenden Punkt das entsprechende Netzelement gefunden werden, in dem dieser liegt, und die Koordinaten gemäß Gl. A.2 normiert werden. Anschließend kann mit den bereits berechneten Koeffizienten aus Gl. A.3 mithilfe von Gl. A.1 der Funktionswert berechnet werden.

Zudem kann die Rechenzeit des Python-Codes mittels des Packages Numba verbessert werden [75]. Dieses Package wandelt Python-Funktionen in optimierten Maschinencode um, sodass dieser mit C und Fortran Funktionen mithalten kann.

Testet man den hier entwickelten Algorithmus mit einer für diese Arbeit typischen Größe der Simulationsumgebung ($228 \text{ nm} \times 228 \text{ nm} \times 56 \text{ nm}$, Auflösung 1 nm) für einen Zeitschritt, so ergibt sich das in Abb. A.1 dargestellte Ergebnis. Dabei ist bei der Erstellung der Interpolationsklasse und anschließender Auswertung der Punkte der selbst entwickelte Algorithmus ab einer Punkteanzahl von etwa $2 \cdot 10^5$ schneller. Die Unterschiede sind vor allem bei einer großen Anzahl an zu interpolierenden Punkten sichtbar. So sinkt beispielsweise der Zeitaufwand bei 10^7 Punkten um mehr als den Faktor 20. Nimmt man die reine Auswertezeit, so ist dieser Algorithmus sogar bei wenig Punkten um etwa den Faktor 10 schneller als derjenige von SciPy.

Dies hat den Vorteil, dass man den Zeitschritt Δt_{RKN} für den in Abschnitt 3.3.1 vorgestellten Runge-Kutta-Nyström-Algorithmus auch deutlich kleiner als denjenigen der Meep-Simulation wählen kann. Da sich zwischen zwei Zeitschritten

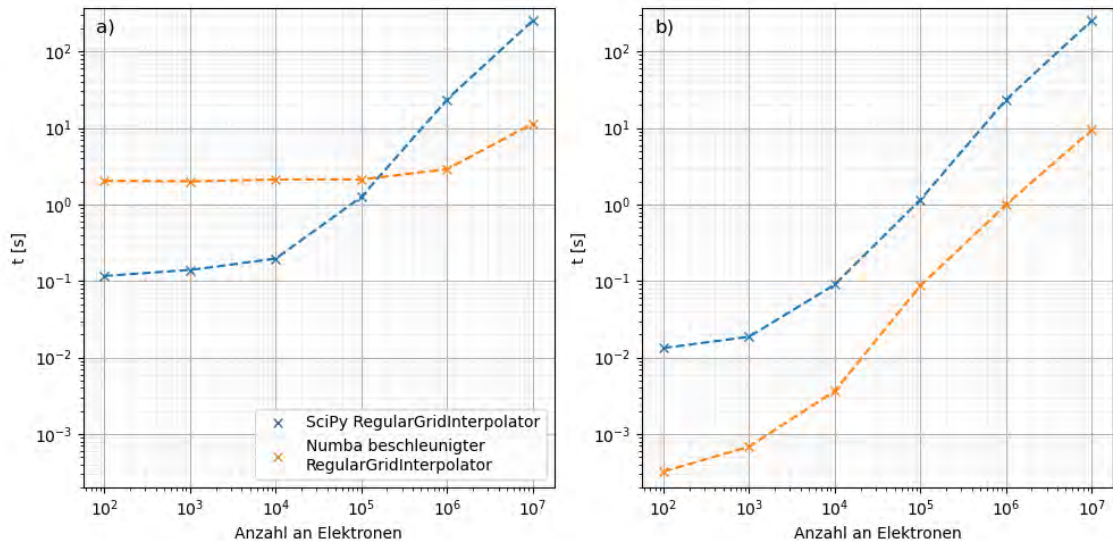


Abbildung A.1: Geschwindigkeit des 4D-Interpolationsalgorithmus in Abhängigkeit der Anzahl an zu interpolierenden Punkten für (a) die Erstellung und Auswertung der entsprechenden Punkte und für (b) die reine Auswertung.

der Meep-Simulation die Koeffizienten a_{ijkl} nicht ändern, müssen diese auch lediglich einmalig berechnet werden. In diesem Fall fällt nur die in Abb. A.1(b) dargestellte Auswertezeit an.

Erklärung der Urheberschaft

Ich erkläre hiermit an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht.

Die Arbeit wurde bisher in gleicher oder ähnlicher Form in keiner anderen Prüfungskommission vorgelegt und auch noch nicht veröffentlicht.

.....
Ort, Datum

.....
Unterschrift