

# Kapitel 7

## Dragging

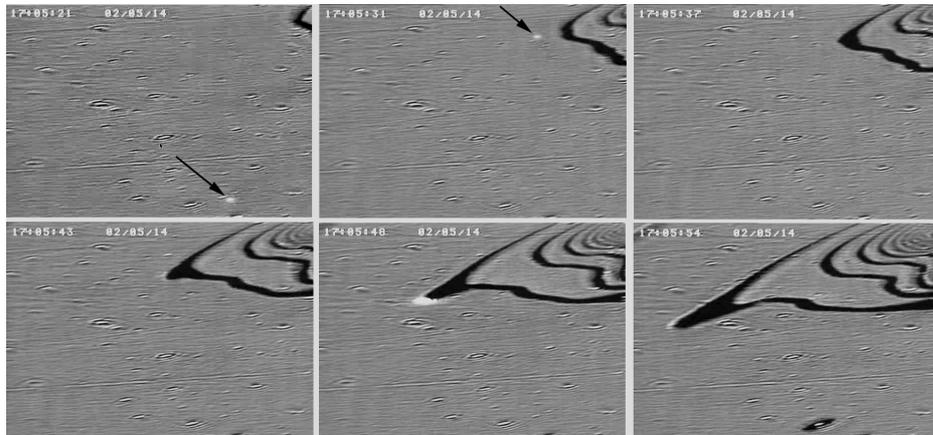
Im vorigen Kapitel wurde als letztes untersucht, welche Auswirkungen das Schreiben einer geraden Linie mit dem Laser hat. Dabei war die Temperaturerhöhung durch den Laser immer ausreichend, so daß im unbewegten Zustand Sauerstoffpulse ausgelöst wurden. In diesem Kapitel geht es um den Einfluß eines subkritischen Laserspots, also eines fokussierten Lasers, dessen Intensität so weit reduziert wurde, daß er nicht mehr in der Lage ist, eigenständig Sauerstoffwellen zu erzeugen. Der Laserspot wird zu Beginn des Experiments vor einer Welle positioniert, die spontan an einer anderen Stelle auf dem Kristall entstanden ist. Sobald die Welle den Laserspot erreicht, wird dieser entlang der vorgegebenen Linie mit konstanter Geschwindigkeit bewegt. Es zeigt sich, daß bei nicht zu hohen Geschwindigkeiten die Welle am Laserspot „haften“ bleibt und dadurch eine neue Form annimmt, die der einer Bugwelle bei einem Schiff ähnelt. Diese Art, eine Welle zu ziehen, wird im weiteren Verlauf auch „Dragging“ genannt. Ein Beispiel für ein solches Experiment ist in Abbildung 7.1 gezeigt.

### Experimente und 2D-Simulationen<sup>1</sup>

Variiert man die Geschwindigkeit, mit der man den Laserspot bewegt, so erhält man für die entstehende Keilform der Welle verschiedene Öffnungswinkel. Wird die Geschwindigkeit zu groß, so reißt die Welle nach einer kurzen Wegstrecke des Draggings ab. Bei noch größeren Geschwindigkeiten wird die Welle überhaupt nicht mehr sichtbar mitgezogen. Abbildung 7.2a zeigt die experimentell erhaltenen Öffnungswinkel bei verschiedenen Draggings-Geschwindigkeiten. Bei dem Datenpunkt mit der größten Geschwindigkeit

---

<sup>1</sup>Alle Simulationen dieses Kapitels wurden entweder von Xiujiang Li in Princeton oder von Dr. Athanasios Papathanasiou am Fritz-Haber-Institut in Berlin oder von beiden gemeinsam durchgeführt.



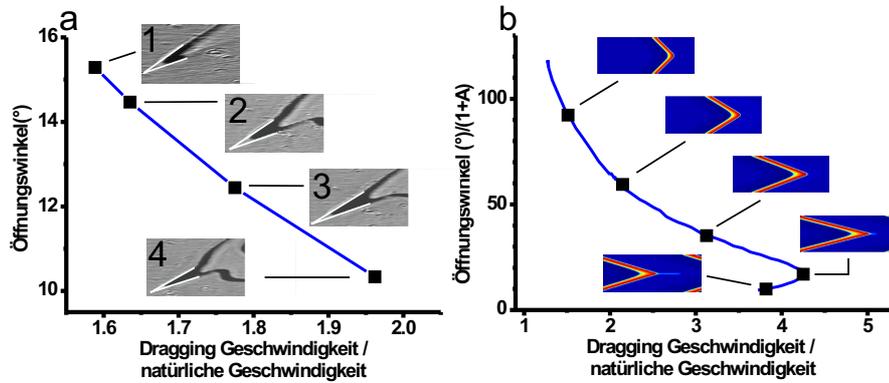
**Abbildung 7.1:** Beispiel für ein „Dragging“-Experiment. Der Laserspot ist in den ersten beiden Bildern durch einen schwarzen Pfeil markiert. Eine Sauerstoffwelle kommt von rechts oben in den Beobachtungsbereich hinein. Der Laser wird im zweiten Bild vor diese Welle positioniert. Nachdem die Welle im dritten Bild den Laserspot erreicht hat, beginnt dieser mit seiner Bewegung in Richtung des linken unteren Bildbereichs. Die Richtung ist um ca.  $10^\circ$  gegenüber der Richtung der schnellen CO-Diffusion ( $[1\bar{1}0]$ ) gekippt. Die Welle wird vom Laserspot mitgezogen, so daß sich eine Keilform ausbildet. Die experimentellen Bedingungen waren:  $T = 456$  K,  $p_{\text{CO}} = 3,9 \times 10^{-5}$  mbar und  $p_{\text{O}_2} = 3,0 \times 10^{-4}$  mbar. Die Laserleistung betrug 1 W. Die Größe des Bildausschnitts beträgt  $1,6 \text{ mm} \times 1,1 \text{ mm}$  (aus [115]).

verliert der Laser die Welle nach ca. dreiviertel seines Weges, welcher ca. 1,5 mm lang ist. In Abbildung 7.2b sind die Ergebnisse zweidimensionaler Simulationen<sup>2</sup> zu sehen. Qualitativ ergibt sich eine gute Übereinstimmung.

Die Simulationen machen einen weiteren Bereich zugänglich, der im Experiment nicht untersucht werden kann: die instabilen Lösungen des Problems. Diese sind ebenfalls in Abbildung 7.2b dargestellt. Während bei dem stabilen Dragging die Welle vom Laser mitgezogen wird und dieser Zustand gegenüber kleinen Störungen stabil ist, so wird zwar die Welle auch bei den instabilen Lösungen vom Laser mitgezogen. Dieser – im mitbewegten Koordinatensystem stationäre – Zustand ist aber gegenüber Störungen instabil. Das heißt, daß er nur dann auftritt, wenn die Ausgangsbedingungen dem Zustand exakt entsprechen und keine Störungen auftreten. Das ist natürlich im Experiment nicht zu erreichen. Das unterste eingesetzte Bild in Abbildung 7.2b zeigt ei-

---

<sup>2</sup>X. Li.



**Abbildung 7.2:** Gemessenes (a) und berechnetes (b) Bifurkationsdiagramm für das Dragging-Experiment. Die Geschwindigkeit, mit der der Laserspot die Welle zieht, ist normiert worden mit der Geschwindigkeit, die die Welle natürlicherweise in dieser Richtung hätte (experimentell  $29,1 \mu\text{m/s}$ ). Die eingesetzten Bilder zeigen jeweils das experimentelle bzw. das berechnete Aussehen der gezogenen Wellen, bei denen die Öffnungswinkel bestimmt wurden. Da in den Simulationen auch instabile Lösungen gefunden werden können, sind diese ebenfalls in (b) dargestellt. Man erkennt, daß sich die Spitze der Welle auf dem instabilen Ast der Lösungen etwas von dem Laserspot entfernt hat. Diese Distanz ist  $A$ , welche in der Auftragung (Öffnungswinkel ( $^\circ$ ))/( $1+A$ )) der berechneten Ergebnisse dazu benutzt wurde, um den instabilen Ast der Lösungen optisch von dem stabilen Ast zu trennen (für den stabilen Ast ist  $A = 0$ ). Die Spitze der instabilen Lösung ist durch einen kleinen dünnen Bereich geringer Sauerstoffbedeckung mit dem Laserspot verbunden. Die experimentellen Bedingungen waren:  $T = 456 \text{ K}$ ,  $p_{\text{CO}} = 3,9 \times 10^{-5} \text{ mbar}$  und  $p_{\text{O}_2} = 3,0 \times 10^{-4} \text{ mbar}$ . Die Laserleistung betrug  $1 \text{ W}$ . Die Parameter der Simulationen waren:  $T = 540 \text{ K}$ ,  $p_{\text{CO}} = 4,52 \times 10^{-5} \text{ mbar}$ ,  $p_{\text{O}_2} = 1,33 \times 10^{-4} \text{ mbar}$ , der Diffusionskoeffizient von  $\text{CO}$  wurde mit  $D_{\text{CO}} = 1 \mu\text{m}^2/\text{s}$  angenommen. Die Größe der Domäne war  $180 \times 60 \mu\text{m}^2$  mit periodischen Randbedingungen in  $x$  und „no flux“ in  $y$  (aus [120]).

ne solche instabile Lösung. Es fällt auf, daß zwischen der Spitze der Welle und dem Laserspot eine gewisse Distanz liegt. Diese Distanz wurde mit  $A$  bezeichnet und dient bei der Auftragung zur Unterscheidung zwischen dem Ast der instabilen Lösungen und dem der stabilen Lösungen, für den  $A = 0$  ist. Die beiden Äste treffen sich bei der kritischen Dragging-Geschwindigkeit. Bei größeren Geschwindigkeiten tritt kein Dragging mehr auf. Bewegt man sich auf dem instabilen Ast auf die kritische Geschwindigkeit zu, so verrin-

gert sich A, bis es – wie auf dem stabilen Ast – den Wert 0 genau bei der kritischen Geschwindigkeit erreicht.

Es ist außerdem interessant zu sehen, daß die Spitze der gezogenen Welle durch einen schmalen Bereich geringer Sauerstoffbedeckung weiterhin mit dem Laserspot verbunden ist. Dieses schmale „Band“ erinnert an die Ausformungen von Membranen, die starken Kräften an einzelnen Punkten unterliegen [122, 123].

### 1D-Simulationen

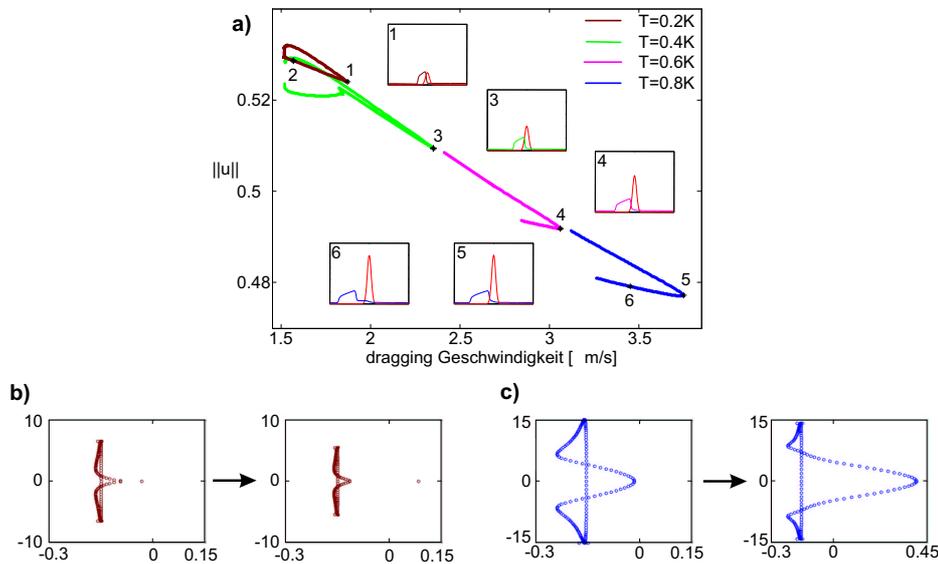
Das Dragging-Phänomen wurde systematisch anhand von 1D-Simulationen<sup>3</sup> untersucht. Abbildung 7.3a zeigt einige Bifurkationsdiagramme, bei denen die Farbe die Stärke der durch den Laser hervorgerufenen Temperaturinhomogenität kodiert. Angegeben ist die maximale Temperaturerhöhung in der Mitte des Laserspots. Der Bifurkationsparameter ist die Dragging-Geschwindigkeit. Man erkennt jeweils deutlich, daß es ein Intervall stabilen Draggings gibt (der Puls erreicht im mitbewegten Koordinatensystem eine stationäre Form, welche gegen Störungen stabil ist), welches zu größeren Geschwindigkeiten hin durch eine sogenannte „Turning-Point“-Bifurkation begrenzt ist. Hier kollidiert – wie bereits bei den 2D-Simulationen – der Ast mit den instabilen Lösungen mit dem der stabilen Lösungen. Die Art der Bifurkation läßt vermuten, daß bei der kritischen Dragging-Geschwindigkeit ein einzelner reeller Eigenwert die imaginäre Achse bei 0 überschreitet. Der Ast der stabilen Lösungen „dreht um“ und wird zum Ast der instabilen Lösungen.

Bemerkenswerterweise werden aber zwei unterschiedliche Szenarien bei den Simulationen gefunden: Bei geringen Laserleistungen ist es in der Tat ein einzelner Eigenwert, der die imaginäre Achse kreuzt (Abbildung 7.3b). Bei höheren Laserleistungen jedoch beginnt eine ganze Parabel von Eigenwerten, die stark an ein kontinuierliches Spektrum erinnern, die imaginäre Achse zu kreuzen, wobei die Spitze dieser Parabel wiederum durch 0 geht (Abbildung 7.3c). Dieser erste instabil werdende Eigenwert erzeugt die „Turning-Point“-Bifurkation. Alle weiteren Eigenwerte, deren imaginärer Anteil nicht 0 ist, entsprechen einer fast kontinuierlichen Kaskade von Hopf-Bifurkationen des diskretisierten Problems.

Auf zwei Dinge sei im Zusammenhang mit der Besprechung dieser Abbildung hingewiesen: 1) Das Kreuzen kontinuierlicher Eigenwertspektren ist mit dem Beginn „chemischer Turbulenz“ in Modellen der CO-Oxidation verbunden [124, 125]. Dies läßt eine genauere computerunterstützte Untersuchung des Ablöseprozesses des Pulses vom Laserspot sowie der Umgebung der in-

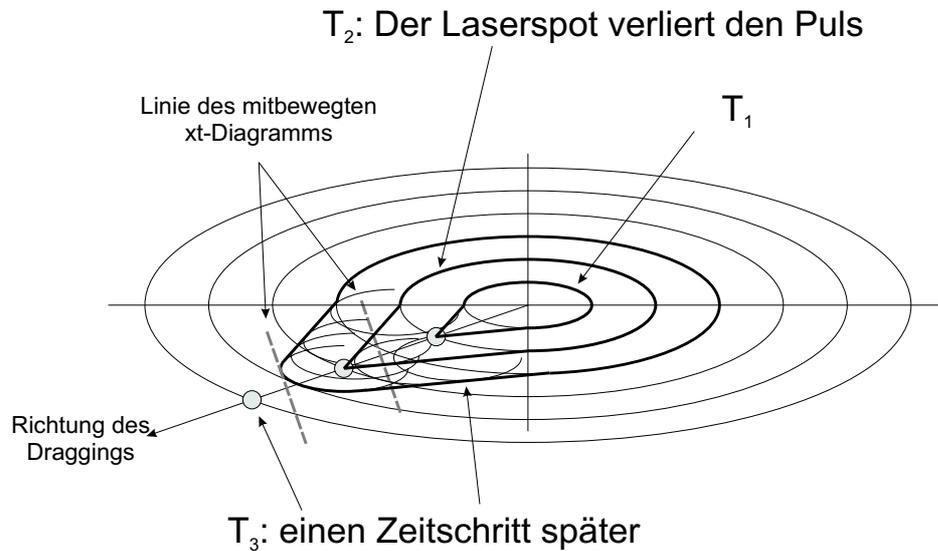
---

<sup>3</sup>X. Li, Princeton.



**Abbildung 7.3:** (a) 1-D Bifurkationsdiagramm: Die verschiedenen Farben kodieren die Intensität des Lasers.  $\|u\|$  ist ein Maß für die CO-Bedeckung der gesamten Domäne und dient zur Charakterisierung der Lösung. Der Bifurkationsparameter ist die Dragging-Geschwindigkeit. Die eingesetzten Bilder zeigen die Sauerstoffbedeckung und die Temperatur (rot) der Lösung an den markierten Punkten. (b) und (c) zeigen die Eigenwertspektren für das Kreuzen eines einzelnen Eigenwertes (b) an den Punkten 1 und 2 in (a) bzw. einer Parabel von Eigenwerten (c) an den Punkten 5 und 6 in (a). Simulationsparameter:  $T = 540\text{ K}$ ,  $p_{\text{CO}} = 4,52 \times 10^{-5}\text{ mbar}$ ,  $p_{\text{O}_2} = 1,33 \times 10^{-4}\text{ mbar}$ ,  $D_{\text{CO}} = 1\ \mu\text{m}^2/\text{s}$ , Länge der Domäne  $80\ \mu\text{m}$  mit periodischen Randbedingungen (aus [120]).

stabil gezogenen Pulse vielversprechend erscheinen. 2) Interessanterweise ist auch bei den 1D-Simulationen – wie schon zuvor bei den 2D-Simulationen – auf dem instabilen Ast der gezogene Puls ein kleines Stück vom Laserspot entfernt und mit diesem durch eine Region mit geringerer Sauerstoffbedeckung verbunden (siehe eingefügtes Bild 6 in Abbildung 7.3a). Wiederum zeigt sich, daß der Abstand zwischen eigentlicher Welle und Laserspot umso geringer wird, je mehr man sich auf dem instabilen Ast dem Umkehrpunkt nähert.



**Abbildung 7.4:** Schematische Erläuterung des Effektes der Anisotropie der CO-Diffusion auf das Verhalten einer Welle, die sich vom ziehenden Laserspot ablöst. Es sind drei äquidistante Zeitpunkte gezeigt:  $T_1$ , bei dem die Welle gezogen wird,  $T_2$ , der Zeitpunkt an dem die Welle den Laserspot verliert und sich entsprechend ihrer natürlichen Geschwindigkeit von dieser Form ausgehend weiter ausbreitet, und  $T_3$ , ein Zeitpunkt etwas später, zu dem die Welle sich anscheinend in Richtung der schnelleren Ausbreitungsrichtung „verbogen“ hat. Die grauen Kreise geben die Position des Laserspots zu den drei Zeitpunkten an. Während die dicken schwarzen Striche die Form und die Position der Welle angeben, dienen die dünnen Striche zur Orientierung, wie die Welle ohne Dragging aussehen würde.

### Einfluß der Anisotropie der CO-Diffusion

Während die Simulationen die Anisotropie der CO-Diffusion nicht berücksichtigen, ist sie bei den Experimenten natürlich immer vorhanden. In verschiedenen Dragging-Richtungen ergeben sich somit verschiedene kritische Geschwindigkeiten für die Bewegung des Laserspots auf der Probe. Außerdem wird sich das Verhalten der Welle, wenn sie sich vom Laserspot ablöst, für größere Geschwindigkeiten unterscheiden je nach dem, in welche Richtung relativ zu den Achsen der schnellen und langsamen Diffusion der Laserspot bewegt wurde. Für den Fall, daß der Laser nicht genau in einer der beiden Richtungen - langsame oder schnelle CO-Diffusion - bewegt wird, ist das schematisch in Abbildung 7.4 dargestellt.

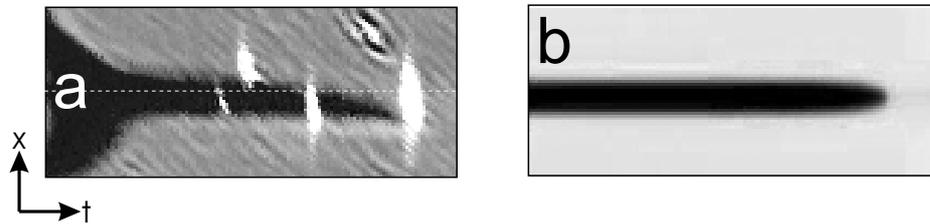
Die dünnen Ellipsen in Abbildung 7.4 geben an, welche Form eine Welle

zu verschiedenen Zeitpunkten hätte, wenn sie ungestört vom Zentrum ausgesandt würde. Die dicken schwarzen Linien zeigen, wie sich die Form der Welle verändert, wenn sie durch einen Laserspot, der durch einen kleinen grauen Kreis symbolisiert wird, gezogen wird. Zum Zeitpunkt  $T_2$  wird angenommen, daß die Welle sich vom Laserspot ablöst und sich danach entsprechend ihrer natürlichen Geschwindigkeit in der jeweiligen Richtung weiter ausbreitet. Die Ausbreitung wird analog zum Huygensschen Sekundärwellenprinzip konstruiert, nur daß in diesem Kontext keine Kreiswellen, sondern Ellipsen verwandt werden. Man erkennt, daß sich die Spitze der Welle in Richtung der schnelleren Diffusionsrichtung verschiebt, die Welle sich also „verbiegt“. Wenn man nun ein Raum-Zeit-Diagramm senkrecht zur Bewegungsrichtung des Laserspots in einem konstanten Abstand zu diesem erzeugt – also in einem mitbewegten Koordinatensystem –, so sollte diese „Verbiegung“ der Welle sichtbar gemacht werden können, wie man sich anhand der beiden gestrichelten Linien in Abbildung 7.4 leicht klarmacht: Während des Draggings ist die Breite des Anteils der Welle, den man im  $xt$ -Diagramm sieht, konstant. Sie ist nicht ganz symmetrisch zur Mitte, da der Winkel der Welle zur Dragging-Richtung ebenfalls von der Anisotropie der Ausbreitungsgeschwindigkeit beeinflusst wird. Nachdem die Welle sich vom Laserspot gelöst hat und anfängt, sich zu verbiegen, wird dieses in dem mitbewegten Raum-Zeit-Diagramm ebenfalls durch eine Krümmung deutlich. Der letzte dunkle Punkt im Raum-Zeit-Diagramm liegt deutlich neben der Mitte und damit neben dem Pfad, den der Laserspot überstrichen hat.

Die Experimente in den Abbildungen 7.1 und 7.2a wurden so durchgeführt, daß die Richtung der Bewegung des Laserspots um  $10^\circ$  von der Richtung schneller CO-Diffusion abweicht. Ein in einem Abstand von  $38 \mu\text{m}$  mitbewegtes Raum-Zeit-Diagramm und ein entsprechendes der Simulation<sup>4</sup>, die keine Anisotropie enthält, ist in Abbildung 7.5 gezeigt. Das Verbiegen der Welle im experimentellen Fall ist deutlich, während bei der Simulation die Welle vom Laser symmetrisch verloren wird. Im experimentellen Fall ist sogar sichtbar, daß der Laserspot die Welle kontinuierlich verliert. Zuerst holt er die Spitze der Welle ein, was zu dem starken Einschnüren des schwarzen Bereichs am Anfang führt. Danach zieht er sie mit sich, aber auf der einen Seite (oben im Bild) wird der Bereich, der am Laser hängt, kontinuierlich schmaler. Die Krümmung wird stärker, nachdem der Laser die Welle vollständig verloren hat und sie sich nunmehr ausschließlich mit ihrer natürlichen Geschwindigkeit ausbreitet. In den Simulationen ist ein solches Verhalten nicht zu sehen: Der Laserspot zieht die Welle für einige Zeit hinter sich her, um sie dann innerhalb eines recht kleinen Zeitfensters zu verlieren.

---

<sup>4</sup>A. Papathanasiou, Berlin.



**Abbildung 7.5:** Experimentelles (a) und berechnetes (b) mitbewegtes Raum-Zeit-Diagramm. Fall (a) zeigt das Verbiegen der Welle, welche zuvor nicht genau in Richtung der schnellen CO-Diffusion vom Laserspot gezogen wurde, sondern in einem Winkel von  $10^\circ$ . Die gestrichelte Linie in (a) zeigt die Mitte des Raum-Zeit-Diagramms und damit die Höhe an, auf der sich der Laserspot befindet. In (b) erkennt man, daß die Simulation ohne Anisotropie dieses Verhalten nicht zeigt. Die großen weißen Bereiche in (a) sind Stellen entlang seines Weges, an denen der Laserspot von der Probe stärker als üblich gestreut wurde, so daß seine Streustrahlung auch in einem Abstand von  $38 \mu\text{m}$  zum eigentlichen Spot noch als heller Bereich von der CCD-Kamera des EMSI registriert wurde.

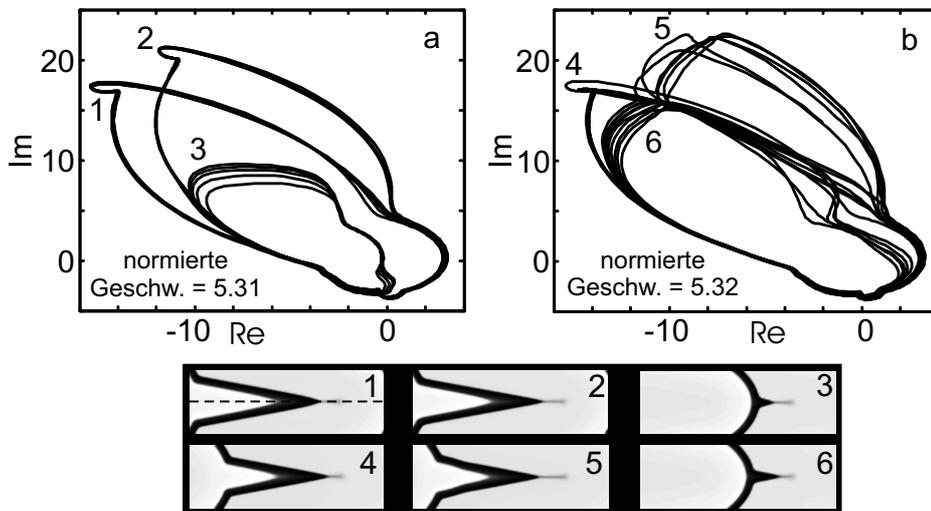
### Periodische und quasiperiodische Phänomene

Da in den Simulationen in der Richtung der Bewegung des Laserspots periodische Randbedingungen angenommen und die Berechnungen im mit dem Laserspot mitbewegten Koordinatensystem durchgeführt wurden, unterliegen die Sauerstoffwellen der Einwirkung mehrerer hintereinander liegender Laserspots. Verliert z.B. der Laserspot die Welle, so verläßt diese auf der einen Seite den Simulationsbereich, um auf der anderen Seite wieder einzutreten. So kann sie dann erneut mit dem Laserspot (was im Experiment einem folgenden identischen Laserspot entspräche) interagieren. Die Ergebnisse dieser Simulationen<sup>5</sup> sind in Abbildung 7.6 zusammengefaßt.

In Abbildung 7.6a und 7.6b wird der Imaginärteil gegen den Realteil der ersten Fourierkomponente der berechneten CO-Bedeckung entlang der Linie, die in Bild 1 gestrichelt eingezeichnet ist, aufgetragen. In Abbildung 7.6a erkennt man eine Periode drei, zu der drei Arten der Ablösung der Welle vom Laserspot gehören, welche in den Bildern 1–3 dargestellt sind. Diese Bilder entsprechen den Punkten 1–3 in 7.6a. Insbesondere die dritte Art (3) der Ablösung der Welle vom Laserspot unterscheidet sich deutlich von den beiden anderen (1+2).

In Abbildung 7.6b ist keine eindeutige Periode mehr zu erkennen. Der La-

<sup>5</sup>A. Papathanasiou, Berlin.



**Abbildung 7.6:** Berechnete Ablösungsszenarien (Phasendiagramme in (a) und (b), Bilder der CO-Bedeckung im Simulationsbereich in 1–6) bei leicht verschiedenen Draggings-Geschwindigkeiten. In (a) und (b) wird jeweils der Imaginärteil gegen den Realteil der ersten Fourierkomponente der CO-Bedeckung entlang der Linie, die in Bild 1 gestrichelt ist, aufgetragen. Die Bilder 1–6 wurden an den entsprechenden Punkten in (a) und (b) berechnet. Sie zeigen die verschiedenen Arten, wie der Laser die Welle verlieren kann. In (a) verhält sich die Abfolge von Ablösungsarten periodisch, während sie in (b) quasiperiodisch ist. Die übrigen Parameter waren die gleichen wie in Abbildung 7.2 (aus [120]).

serspot verliert die Welle quasiperiodisch. Exemplarisch sind wiederum drei Ablösungssituationen in den Bildern 4–6 gezeigt, die an den entsprechenden Punkten in Abbildung 7.6b berechnet wurden. Der Geschwindigkeitsunterschied zwischen den beiden Szenarien – periodisch und quasiperiodisch – beträgt lediglich das 0,01-fache der natürlichen Ausbreitungsgeschwindigkeit der Welle, ca. 0.2 %.

An den Bildern 3 und 6 erkennt man auch, daß die Welle, wenn sie nicht mehr gezogen wird, wieder zu ihrer ursprünglichen Form zurückkehrt: Von einer Keilform entwickelt sie sich zu einer eher kreisförmigen Form, bis sie auf den nächsten (bzw. erneut auf den gleichen) Laserspot trifft. Da dieser im Vergleich mit seinem vorhergehenden Versuch, die Welle zu ziehen, nun leicht unterschiedliche Bedingungen antrifft, ändert sich das Verhalten beim Ablösen der Welle vom Laserspot. In den Situationen, die Bild 3 bzw. Bild 6 entsprechen, verliert der Laser die Welle relativ früh, ohne ihr eine starke

Keilform geben zu können. Je nachdem, wann der Laser die Welle erneut trifft, können sich somit periodische oder quasiperiodische Abfolgen von Ablösungsprozessen ausbilden.