

Stephan Wonzak: Molekulardynamische Simulationen von Argon-Clustern. 2002

Die homogene Keimbildung von Argon und das Verhalten kleiner Cluster werden mit Hilfe von molekulardynamischen Simulationen untersucht. Zu diesem Zweck wurde im Verlauf dieser Arbeit ein Programmpaket namens cluster entwickelt und optimiert.

Es konnte gezeigt werden, daß mit entsprechend hoch gewählter Übersättigung ($S(10)$) Keimbildungsexperimente in Computersimulationen durchgeführt werden können. Die Keimbildungsraten lagen dabei in der Größenordnung $J=1024$ bis $1028 \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$. Auch das Wachstum der gebildeten Cluster ist bis zu einer Größe von etwa 10 nm Durchmesser zu beobachten. In Systemen mit mehr als einem gebildeten Cluster konnten auch Alterungsprozesse wie Koaleszenz beobachtet werden.

Mit Hilfe der so gebildeten Flüssigkeitströpfchen war es möglich, eine Dampfdruckkurve im Temperaturbereich von 70 K bis 90 K zu bestimmen. Um den Druck über einer gekrümmten Oberfläche in den Druck über einer flachen Oberfläche umzurechnen, wurde eine verbesserte Krümmungskorrektur entwickelt, die den übersättigten Zustand der umgebenden Gasphase berücksichtigt. Die simulierte Dampfdruckkurve zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten.

Als dritter Punkt wurden die Kondensations- und Verdampfungsraten der gebildeten Cluster in Abhängigkeit von Clustergröße und Temperatur bestimmt. Diese mikroskopischen kinetischen Daten sind vor allem zur Weiterentwicklung von Keimbildungstheorien von Interesse. Die Kondensationsrate war bislang nur aus Überlegungen der kinetischen Gastheorie zugänglich.

Homogeneous nucleation of argon and the behaviour of small clusters is investigated using molecular dynamics simulations. To this end a program package named cluster was developed and optimized. It is shown that nucleation can indeed be observed in simulation if the supersaturation is high enough ($S(10)$). The observed nucleation rates were on the order of $J=1024$ to $1028 \text{ cm}^{-3}\text{s}^{-1}$. The growth process of the clusters could be observed up to a diameter of some 10 nm. In systems with more than one cluster formed during nucleation, ageing processes like coalescence were observed.

Using the resulting liquid droplets a vapor pressure curve was simulated in a temperature range between 70 K and 90 K. To rescale the vapor pressure over a curved surface into the pressure over a flat surface an improved curvature correction was developed. It takes the supersaturated condition in the gas phase into account. The simulated vapor pressure data shows a good agreement with experimental data.

Finally condensation and evaporation rates of small clusters were obtained as a function of cluster size and temperature. These microscopic kinetic data are of interest for the development of better theories of nucleation.