

Mesoskopische Exzitoncluster in gekoppelten Quantenpunkten

Diplomarbeit

an der

- Universität Rostock -

Fachbereich Physik



vorgelegt von

Patrick Ludwig

Studienjahr: 1998

Eingereicht am: 4. Dezember 2003

Betreuer: Herr Prof. Dr. Michael Bonitz, Kiel

Arbeitsgruppe: Statistische Physik und Theorie der Plasmen

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Übersicht der Kapitel	2
2	Stark korrelierte mesoskopische Coulomb-Systeme	5
2.1	Physikalische Kenngrößen und Einordnung Coulomb'scher Systeme . . .	5
2.2	Wigner-Kristallisation	8
2.3	Charakteristika mesoskopischer Systeme in Quantenpunkten	10
2.3.1	Elektronen in 2D-Fallen (Quantenpunkten)	11
2.3.2	Vertikal gekoppelte Quantenpunkte	14
3	Modell	15
3.1	Hamilton-Funktion	16
3.2	Entdimensionalisierung	17
3.3	Grenzfälle	18
3.4	Mittlerer Teilchenabstand	18
3.5	Energien	20
4	Grundlagen: Molekulardynamik-Simulationen mesoskopischer Systeme	23
4.1	Problematik der Grundzustandsbestimmung	23
4.2	Lösungsansatz: Simulated Annealing	24
4.3	Molekulardynamik-Simulationen	26
4.3.1	Begriffsbildung	27
4.3.2	Allgemeine Propagationsgleichungen	28
4.3.3	Integration der Bewegungsgleichungen	30
4.3.3.1	Runge-Kutta-Methode	31
4.3.3.2	Dynamische Steuerung der Schrittweite	32
4.3.4	Numerische Fehler	35
4.4	DAVI - Ein interaktives MD-Visualisierungs-Programm	35
4.4.1	Implementierung	36
4.4.1.1	Programmiersprache	36
4.4.1.2	3D-Graphikbibliothek	37
4.4.1.3	Spezifikation des Dateiformats	37
4.4.2	Programmeigenschaften	38

5	Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d	41
5.1	Praktische Umsetzung der MD-Simulation	41
5.1.1	Initialisierung	42
5.1.2	Berechnung der Kräfte	43
5.1.3	Integration	43
5.1.4	Temperierung	44
5.1.5	Durchführung	44
5.1.6	Auswertung	47
5.2	Simulationsergebnisse	48
5.2.1	Strukturübergänge	48
5.2.2	Energiebeiträge	52
5.3	Einschichtmodell mit variablem Wechselwirkungspotential	56
5.3.1	Modell	56
5.3.2	Ergebnisse	57
5.4	Schlußfolgerungen	59
6	Anregungsspektrum der Normalmoden	61
6.1	Theoretische Grundlagen	61
6.2	Umsetzung	62
6.3	Ergebnisse	63
6.4	Weitere Schritte	66
7	Zusammenfassung und Ausblick	69
A	Verzeichnis verwendeter Symbole	73
B	Veröffentlichungen zu den Resultaten der Diplomarbeit	75
	Literatur	77

1 Einleitung

Gegenstand dieser Arbeit sind stark korrelierte, mesoskopische, klassische Coulomb-Systeme in gekoppelten Quantenpunkten. Das Interesse an stark korrelierten Coulomb-Systemen, d.h. Systemen, in denen die Wechselwirkungsenergie die kinetische Energie deutlich übersteigt, ist in den letzten Jahren stetig gewachsen. Beispiele sind:

- sogenannte „Warm Dense Matter“, d.h. Plasmen bei hohem Druck und moderaten Temperaturen,
- stark korrelierte Materie im Universum (z.B. Ionenkristalle in Weißen Zwergen),
- Ionen in Fallen bei tiefen Temperaturen,
- „staubige“, bzw. kolloidale Plasmen.

Zu all diesen Richtungen wird aktiv geforscht. Für ein Verständnis der Eigenschaften dieser Systeme ist ein detailliertes Wissen über Korrelationsphänomene in klassischen und Quanten-Vielteilchen-Systemen ausschlaggebend.

Eine weitere Richtung, die in den letzten Jahren eine rasante Entwicklung genommen hat, ist die Halbleiterphysik und -technologie, insbesondere die Untersuchung dimensionsreduzierter Strukturen. Da herkömmliche Bauteile bei fortschreitender Miniaturisierung an ihre Grenzen stoßen (erwähnt sei die Problematik der großen Wärmeentwicklung, der Dichte der Leiterbahnen, Leckströme usw.), wächst das Interesse an neuartigen physikalischen Prozessen und Bauteilen - der Nanotechnologie. Die Untersuchung finiter, stark korrelierter Coulomb-Systeme in Quantenpunkten, d.h. Strukturen, in denen die Dimensionalität in drei Richtungen reduziert (confined) ist, bringt eine Vielfalt an spannender Physik hervor. Reizvoll ist die Möglichkeit, auf kleinstem Raum Strukturen mit vorgegebenen Eigenschaften zu erzeugen - künstliche „Atome“ oder „Moleküle“. Überdies treten in diesen mesoskopischen Systemen Effekte auf, die durch die Quanteneigenschaften der Materie verursacht werden, wie die Quantisierung der elektrischen Ladung, was praktische Bedeutung für Anwendungen in der Einzelladungselektronik oder auch für optische Schaltungen hat, da Quantenpunkte (relativ) ideale Einzelphotonenquellen darstellen. An-

1. Einleitung

wendungspotential ergibt sich in diesem Zusammenhang auch durch das einzigartige Korrelationsphänomen der Wignerkristallisation [38, 43].

Seit kurzem richtet sich das Augenmerk verstärkt auf räumlich separierte, zweidimensionale Elektron-Loch-Systeme, d.h. seitdem es möglich ist, derartige Systeme experimentell herzustellen [41]. Ein wichtiger Grund hierfür ist die lange Lebensdauer und der bosonische Charakter räumlich indirekter Exzitonen und die damit verbundene Möglichkeit der Bose-Einstein-Kondensation [34]. Eine potentielle Anwendung von Bose-Einstein-Kondensaten ist ein sogenannter „Atomlaser“, d.h. ähnlich wie einem Halbleiterlaser, in dessen Emission eine Mode stark besetzt wird, ist ein solches Kondensat eine intensive Quelle für kohärente Materiewellen. Ein prinzipieller Vorteil von Doppel- gegenüber Einschichtsystemen liegt darin, dass durch die Variation des Schichtabstandes ein wesentlich größerer Spielraum hinsichtlich physikalisch interessanter Situationen erreicht wird [5, 7]. Für eine Realisierung der aufgezeigten Perspektiven ist jedoch ein grundlegendes Verständnis der physikalischen Eigenschaften dieser Systeme notwendig. Mit der vorliegenden Arbeit soll das Wissen über mesoskopische Exzitonencluster, die durch die Kopplung zweier vertikal angeordneter Quantenpunkte realisiert werden, um einen Aspekt erweitert werden.

1.1 Übersicht der Kapitel

Zielstellung dieser Arbeit ist die Entwicklung und Anwendung einer Simulationstechnik, mit der die Gleichgewichts- und dynamischen Eigenschaften eines mesoskopischen Elektron-Loch-Clusters effizient untersucht werden können.

Nachdem in Kapitel 2 ein Überblick über die Grundlagen der Physik stark korrelierter mesoskopischer Coulomb-Systeme gegeben und benötigte Größen und Begriffe eingeführt und erläutert wurden, wird im 3. Kapitel das Modell eines symmetrischen Elektron-Loch-Zweischichtsystems aufgestellt und charakteristische Größen und Grenzfälle analysiert.

Eine Hauptaufgabe wird es sein, die Grundzustände unter besonderem Aspekt der strukturellen Eigenschaften (Schalen-Konfiguration und Symmetrie) und der Energie als Funktion des Schichtabstandes d zu analysieren. Das dazu entwickelte Konzept ist in Kapitel 4 beschrieben. Insbesondere wird dort auf das Verfahren des „Simulated Annealing“ und auf seine numerische Umsetzung als eine Technik der MD-Simulation eingegangen. Ein weiterer Abschnitt ist dem im Rahmen dieser Diplomarbeit erstellten Graphikpaket DAVI gewidmet, das eine effiziente Auswertung

der Clusterkonfigurationen ermöglicht.

Im Mittelpunkt des 5. Kapitels stehen die praktische Realisierung sowie die Auswertung der Resultate der durchgeführten Simulationen. Um die Strukturübergänge zu klären, wird außerdem ein Einschichtmodell mit variablem Wechselwirkungspotential herangezogen.

In Kapitel 6 steht die offene Frage nach den Anregungsspektren der Normalmoden im Vordergrund. Die Anregungsspektren dieser Cluster sind derzeit nur für den Fall der Single-Layer-Systeme und für Elektron-Elektron Doppelschichtsysteme bekannt [17, 18, 4]. Untersuchungen zu Elektron-Loch-Bilayern stehen noch aus. In dieser Arbeit können erste Ergebnisse präsentiert werden.

Das 7. und letzte Kapitel enthält eine Zusammenfassung der wichtigsten Resultate und einen kurzen Ausblick auf zukünftige Fragestellungen.

Zusammen mit den numerischen Resultaten gehören zur vorliegenden Arbeit das selbständig erstellte MD-Programm-Paket sowie das MD-Visualisierungsprogramm DAVI. Ziel war es auch, mit der entwickelten Simulationstechnik eine Grundlage für weitere Generationen von numerischen Modellen zu schaffen.

1. Einleitung

2 Stark korrelierte mesoskopische Coulomb-Systeme

Bevor in Kapitel 3 mit der Formulierung des physikalischen Modells begonnen werden kann, sollen hier die Grundlagen vorbereitet und diese Arbeit in einen Bezug zur aktuellen Forschung gestellt werden.

Das Verständnis und die Beschreibung stark korrelierter Coulomb-Systeme ist seit vielen Jahrzehnten ein zentrales Element physikalischer Forschung, das Forschungsgebiet erstreckt sich dabei von der Festkörperphysik bis zur Plasmaphysik. In den letzten Jahren hat sich ein neuer Forschungsweig entwickelt, der sich mit finiten Coulomb-Systemen beschäftigt. Diese sogenannten mesoskopischen Systeme (Cluster) bestehen aus bis zu 100 geladenen Teilchen. Neben der Coulomb-Wechselwirkung, Quanten- und Spineffekten sind hier vor allem Geometrie- bzw. Randeffekte (finite size-Effekte) von Bedeutung, da sie das Systemverhalten wesentlich beeinflussen. Das theoretische Interesse wird vor allem auch durch die beachtlichen experimentellen Fortschritte bei der Herstellung und Handhabung dieser Systeme getragen, sowie durch das große Anwendungspotential, insbesondere in der Nanotechnologie.

2.1 Physikalische Kenngrößen und Einordnung Coulomb'scher Systeme

Die Eigenschaften eines Coulomb-Systems resultieren hauptsächlich aus der Stärke der Wechselwirkung der Ladungsträger und der Entartung des Systems. Bestimmend für diese Systemeigenschaften ist daher das Verhältnis der charakteristischen Energie- und Längenskalen des Systems:

Längenskalen

- a - mittlerer Teilchenabstand; $a \sim n^{-D}$, wobei n die Dichte und $D = 1, 2, 3$ die Dimensionalität des Systems ist.
- a_B^* - effektiver Bohrscher Radius; $a_B^* = \frac{4\pi\epsilon}{q_i q_j} \frac{\hbar^2}{m_{ij}}$ mit der reduzierten Masse m_{ij} ($m_{ij}^{-1} = m_i^{-1} + m_j^{-1}$); für $m_e = m_{i(j)}$, $e = q_{i(j)}$ und $\epsilon_b = 1$ ist $a_B^* = a_B = 5.29177 \cdot 10^{-11} \text{m}$.

2. Stark korrelierte mesoskopische Coulomb-Systeme

- Λ - thermische Wellenlänge; Maß für die quantenmechanische Ausdehnung der Teilchen; für freie Teilchen ist $\Lambda = h/\sqrt{2\pi mk_B T}$ (DeBroglie-Wellenlänge), für gebundene Teilchen die Ausdehnung ihrer Wellenfunktion.

Energieskalen

- $\langle K \rangle$ - mittlere kinetische Energie; im klassischen System ist $\langle K \rangle_{kl} = \frac{D}{2} k_B T$ und im Quantensystem $\langle K \rangle_{qm} = \frac{3}{5} k_B T_F$ mit der Fermi-Temperatur T_F .
- $\langle U_{corr} \rangle$ - mittlere Coulomb-Energie; für freie Teilchen gilt $\langle U_{corr} \rangle_f = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon} \frac{1}{a}$, bzw. für Teilchen im gebundenen Zustand: $\langle U_{corr} \rangle_b = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon} \frac{1}{2a_B^*} \equiv E_R$ ¹.

Anhand des Zustandsdiagramms von Coulomb-Systemen als Funktion von Dichte und Temperatur lässt sich eine Klassifizierung unterschiedlicher Coulomb-Systeme vornehmen, siehe Abb. 2.1. Die Skalierung der Achsen erfolgt über a_B und E_R , die aus den systemspezifischen Werten von m , q , D und ϵ resultieren. Durch Verwendung der natürlichen Einheiten a_B und E_R lassen sich Erkenntnisse vom jeweiligen Forschungsgegenstand abstrahieren und auf andere übertragen.

Den Quotienten aus potentieller und kinetischer (thermischer) Energie $\frac{|\langle U_{corr} \rangle|}{\langle K \rangle}$ bezeichnet man als Coulomb-Kopplungsparameter. Er ist im klassischen Grenzfall durch das Verhältnis

$$\Gamma \equiv \frac{|\langle U_{corr} \rangle|}{k_B T} \quad (1)$$

gegeben. In Quantensystemen wird die Wechselwirkung des Systems durch die relative Beziehung des mittleren Teilchenabstandes a zum effektiven Bohrradius a_B^* bestimmt. Das Verhältnis der Größen a und a_B^* wird durch den Brueckner-Parameter

¹ i) Die Ionisierungsenergie wird üblicherweise in Einheiten der Rydberg-Energie Ry angegeben, wobei $2Ry = 1 Ha$. Die Hartree-Energie ($1 Ha = \frac{m_e e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 \hbar^2} = 27.2117 eV$) ist eine sogenannte atomare Einheit. In diesem Einheitensystem ergibt sich für die Naturkonstanten: $\frac{e^2}{(4\pi\epsilon_0)} = 1$, $\hbar = 1$ und $m_e = 1$.

ii) In einem (Halbleiter-)Kristall wird die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern durch die Kristallionen abgeschirmt. Die Bindungsenergie ist dadurch abgeschwächt. In Analogie zur Rydberg-Konstanten Ry ergibt sich hier die effektive Rydberg-Energie $E_R = \frac{m_{ij} q^4}{32(\pi\hbar\epsilon)^2}$, die gleich der Grundzustands-Bindungsenergie der Teilchen i und j ist.

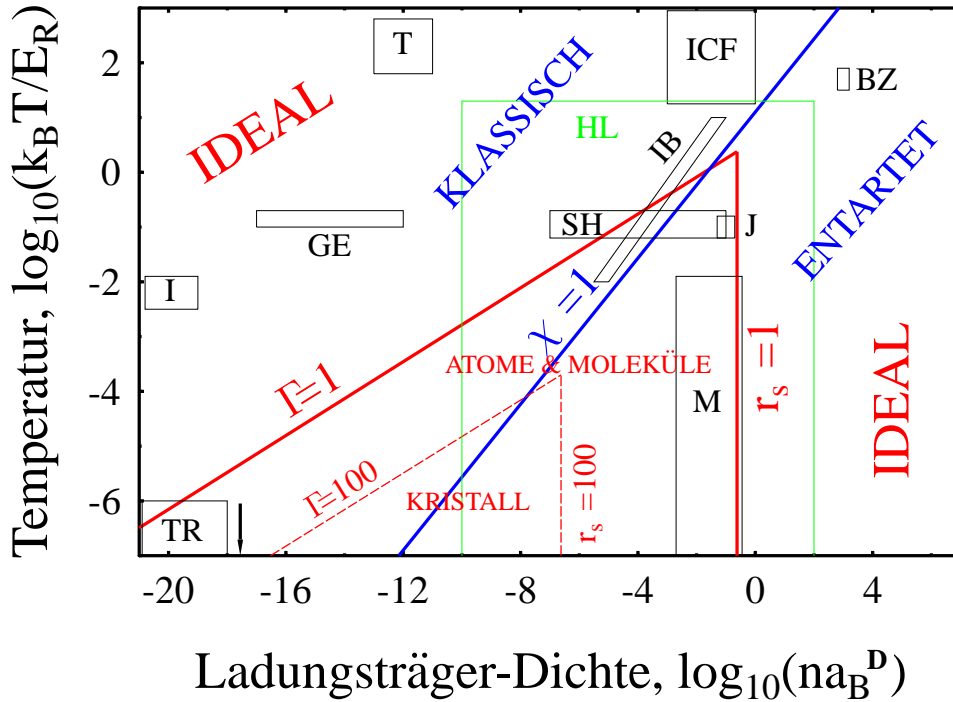


Abb. 2.1: Dichte-Temperatur-Ebene von Coulomb-Systemen im Gleichgewicht. Das Gebiet starker Coulomb-Korrelationen ist durch die Linien $\Gamma = 1$ und $r_s = 1$ eingegrenzt. Die Geraden $\Gamma = 100$ und $r_s = 100$ geben eine grobe Abschätzung der Phasengrenzen der Wigner-Kristalle an. Die Linie $\chi = 1$ trennt den klassisch zugänglichen und quantenmechanischen Bereich. Die inneren Felder veranschaulichen das Vorkommen unterschiedlicher Coulomb-Systeme. Die Abkürzungen stehen für: hochkomprimiertes Plasma im Inneren von Planeten (J) oder Sternen wie den Braunen Zwergen (BZ), Materie, wie sie durch Hochintensitätslaser (Schock-Wellen, SH) oder auch Schwerionenstrahlen (IB) kurzzeitig erzeugt wird, den Bereich der Trägheitskernfusion (ICF), Fusionsplasmen in Tokamaks (T), die Ionosphäre (I), Plasmen in Gasentladungen (GE), Elektronengas in Metallen (M), Elektronen-Loch-Plasma in angeregten Halbleitern (HL), staubige bzw. kolloidale Plasmen sowie ultrakalte Ionenplasmen in Fallen und Speicherringen (TR, der Bereich liegt außerhalb des Diagramms, bei $T \approx 10^{-3} K$). [26]

2. Stark korrelierte mesoskopische Coulomb-Systeme

r_s ausgedrückt, er ist proportional zum Coulomb-Kopplungsparameter $\frac{|U_{corr}|}{k_B T_F}$:

$$r_s \equiv \frac{a}{a_B} \sim \frac{|U_{corr}|}{k_B T_F} . \quad (2)$$

Eine weitere signifikante Größe zur Beschreibung des Systemverhaltens ist der Entartungsparameter $\chi \equiv n\Lambda^D \sim (\Lambda/a)^D$. Die Idealitätsgrenze $\chi = 1$ unterteilt die n-T Ebene formal in einen klassischen ($\chi < 1$) und einen quantenmechanischen ($\chi \geq 1$) Bereich.

Im Limes hoher Temperaturen, $\chi \ll 1$ und $\Gamma \ll 1$, zeigt ein Coulomb-System das Verhalten eines klassischen idealen Gases freier Ladungsträger. Der Grenzfall hoher Dichten, $\chi \gg 1$ und $r_s \ll 1$, führt ebenfalls zu einem idealen Gas - einem Quantengas, in dem sich die Wellenfunktionen der Teilchen überlagern.

Im nichtidealen Bereich $\Gamma, r_s > 1$ überwiegt die Coulomb-Wechselwirkung gegenüber der kinetischen Energie der Ladungsträger und ermöglicht die Bildung nichttrivialer Materie, d.h. anorganischer und organischer Verbindungen.

Im Mittelpunkt dieser Arbeit stehen Coulomb-Strukturen, die sich im Grenzfall sehr starker Korrelationen, d.h. $\Gamma \gg 1$ und $r_s \gg 1$, ergeben: sogenannte *Wigner-Kristalle*, die synonym auch als Elektronenkristalle, Coulomb-Kristalle, bzw. Wigner-Festkörper bezeichnet werden. Die Kristallisationsparameter betragen $\Gamma_{3D}^{cr} \approx 175$ und $r_{s3D}^{cr} \approx 160$ in dreidimensionalen, bzw. $\Gamma_{2D}^{cr} \approx 137$ und $r_{s2D}^{cr} \approx 37$ in zweidimensionalen makroskopischen Strukturen [26].

Wigner-Kristalle sind im Grenzbereich $\chi \lesssim 1$ angesiedelt, was sich darin ausdrückt, dass zur Abbildung der Natur dieser Systeme sowohl die klassische, als auch die quantenmechanische Betrachtungsweise sinnvoll erscheint. Die Eigenschaften und Phänomenologie dieser Kristalle werden im Abschnitt 2.2 besprochen.

2.2 Wigner-Kristallisation

Anfang der 1930er Jahre untersuchte E. Wigner den Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung auf Elektronen in Metallen. Er kam dabei zu dem Ergebnis, dass die (Leitungs-)Elektronen bei hinreichend geringer Dichte im Grundzustand (d.h. $T = 0K$) einen Kristall bilden, d.h. jedes Elektron an einen Gitterpunkt lokalisiert ist. [27]

Die Elektronen kristallisieren, wenn die potentielle gegenüber der kinetischen Energie um etwa den Faktor 100 überwiegt ($\Gamma, r_s \approx 100$), siehe auch Abb. 2.1.

Am Temperatur-Nullpunkt ist der fest-flüssig² Phasenübergang ein quantenmechanischer Prozess, der bei einer kritischen Dichte durch bei höheren Dichten zunehmenden Nullpunkt-Fluktuationen hervorgerufen wird. Die andere Phasengrenze $\Gamma = konst.$ ist klassischer Natur und wird durch die thermischen Fluktuationen, die mit höheren Temperaturen zunehmen, verursacht.

Wegen der in Metallen- oder Halbleiter-Volumenkristallen auftretenden hohen Dichte der Leitungselektronen ist dort bisher keine kristalline Phase der Elektronen beobachtet worden. Auch Versuche, die Elektronendichte durch die Herstellung besonders reiner Einkristalle oder durch starke Kompensation des Halbleiters zu reduzieren, führten lediglich dazu, dass sich die Elektronen an Kristalldefekten und Störstellen anlagerten, noch bevor eine feste Phase erreicht wurde. [37]

Bis heute ist keine Kristallisation von Elektronen in der Art nachgewiesen worden, wie sie Wigner vorhergesagt hatte. Dennoch sind auf dem Gebiet der Wigner-Kristallisation große Fortschritte erreicht und Elektronenkristalle in einer Reihe von Experimenten beobachtet worden. Diese kristallisierten Elektronen (und im weiteren Sinne auch Ionen) werden heute allgemein als Wigner-Kristalle bezeichnet.

Der Nachweis von Elektronenkristallen gelang erstmals 1979 auf der Oberfläche von kalten Heliumtropfen [28]. Bei diesem Experiment wurden Elektronen im Potential der zweidimensionalen Helium-Oberfläche, dass durch induzierte Bildladungen hervorgerufen wird, zusammengespeerrt. Es handelt sich hierbei um ein defektfreies System, in dem eine kristalline Elektronenphase mit einer hexagonalen Struktur beobachtet wurde. Die erzielte Elektronendichte war so gering, dass die Entartung der Elektronen vernachlässigt werden kann.

Kristallisation nichtklassischer Elektronen konnte in Halbleiter-Heterostrukturen in starken Magnetfeldern bei Temperaturen unter 1 K erzeugt werden. Durch Anlegen eines Magnetfeldes hoher Feldstärke (etwa 10 Tesla) senkrecht zu einem zweidimensionalen Elektronengas werden die zunächst frei beweglichen Elektronen in der Ebene auf Zyklotronbahnen gezwungen, deren Durchmesser mit zunehmender Feldstärke abnimmt. Da die räumliche Ausdehnung der elektronischen Wellenfunktionen durch den Bahndurchmesser begrenzt wird, kann der Überlapp der Wellenfunktionen durch Erhöhung der Feldstärke verringert werden. Wird der Radius der Zyklotronbahn klein gegenüber dem Abstand der Elektronen, führt dies zur verstärkten Lokalisierung, resp. zur Kristallisierung, der Elektronen. Ein Überblick

²Die Begriffe „fest“ und „flüssig“ können in Analogie zu den makroskopischen Systemen auch auf finite Systeme übertragen werden. Eine Größe zur Beurteilung des Aggregatzustandes ist die Paarkorrelation (Abstandverteilung) der Teilchen.

2. Stark korrelierte mesoskopische Coulomb-Systeme

ist in Referenz [29] zu finden.

Eine experimentelle Realisierung mesoskopischer Wigner-Kristalle in Halbleitern ohne Magnetfeld ist noch nicht geglückt. Allerdings werden seit einigen Jahren interessante Untersuchungen an Ionenkristallen, bei Temperaturen im Millikelvin-Bereich in Speicherringen und in elektromagnetischen Fallen, durchgeführt, bei denen Wigner-Kristallisation beobachtet wird [30, 31, 32]. Daneben gibt es seit ca. 10 Jahren Wigner-(Coulomb-)Kristalle in „staubigen“ oder kolloidalen Plasmen, die aus mikrometergroßen Teilchen bestehen. Aufgrund ihrer Größe sind diese Teilchen in der Lage, einige tausend Elementarladungen zu tragen, wodurch die erforderliche große Kopplung (Γ) erreicht wird [33].

Allen diesen untersuchten Systemen ist gemein, dass die Coulomb-Wechselwirkung die kinetische Energie um mehr als den Faktor 100 übersteigt ($\Gamma > 100$). Die starke Kopplung führt dazu, dass alle Stöße zwischen den Teilchen stets Mehrteilchenstöße sind, was die theoretische Untersuchung kompliziert, und einen numerischen Ansatz erforderlich macht.

2.3 Charakteristika mesoskopischer Systeme in Quantenpunkten

Die Physik mesoskopischer Systeme behandelt die Eigenschaften von Strukturen, die sich aus einer kleinen Zahl, typischerweise $10 \dots 1000$, „Elementar“-Teilchen (Atome, Ionen, Elektronen, u.a.) zusammensetzen.

Von besonderer Bedeutung im Hinblick auf die Miniaturisierung technischer Bauteile ist die Physik der Halbleiter-Quantenpunkte: Mittels moderner Epitaxiemethoden werden Halbleiter-Heterostrukturen aus Halbleitermaterialien gewachsen, die unterschiedliche Bandlücken aufweisen. Je nach Struktur lässt sich die Bewegung der Elektronen (resp. Löcher) in 1, 2 oder 3 Raumrichtungen einschränken. Man spricht von Quantenfilmen (Quantum Wells), Quantendrähten (Quantum Wires) und Quanteninseln, die häufig auch als Quantenpunkte (Quantum Dots) bezeichnet werden.

Die Größenordnung der Quantenpunkte³ liegt im Bereich zwischen wenigen bis zu mehreren hundert Nanometern (10^{-9} m). Die Größe und die Anzahl der in diesen Strukturen eingeschlossenen Ladungsträger lässt sich präzise kontrollieren. Der durch interne Felder hervorgerufene Potentialverlauf kann in der (x,y)-Richtung, d.h.

³Erfolgt die Einschnürung der Ladungsträger durch ein externes Feld (Ionen in Fallen, staubige Plasmen, etc.), so spricht man auch von offenen Quantenpunkten. Deshalb sei darauf hingewiesen, dass sich die Diskussion auf Halbleiter-Quantenpunkte bezieht.

2.3 Charakteristika mesoskopischer Systeme in Quantenpunkten

senkrecht zur Wachstumsrichtung, häufig durch eine Parabel angenähert werden.

Um Wigner-Kristallisation beobachten zu können, muss die Elektronendichte sehr gering sein (siehe Abschnitt 2.2). Wir betrachten aus diesem Grund im Folgenden Quantenpunkte mit der Ausdehnung, die einem Vielfachen der de-Broglie-Wellenlänge der Elektronen entspricht, so dass sich nach dem Korrespondenzprinzip⁴ der klassische Ansatz anbietet.

2.3.1 Elektronen in 2D-Fallen (Quantenpunkten)

Mesoskopische Systeme geladener Teilchen in 2D-Fallen⁵ sind in den letzten Jahren sowohl theoretisch als auch experimentell mit großem Aufwand untersucht worden. Von besonderem Interesse für diese Arbeit sind die Ergebnisse zu den Grundzustandseigenschaften dieser Systeme. Es konnte nachgewiesen werden, dass finite Coulomb-Systeme, die durch ein externes Feld zusammengehalten werden, einen Wigner-Kristall bilden können [1, 2, 3]. Ferner hat sich herausgestellt, dass sich die Symmetrie dieser Kristalle aufgrund der dominierenden Elektron-Elektron Korrelationen im Quantenkristall nicht signifikant von denen im klassischen Fall unterscheiden.

Zur Simulation der Wigner-Kristallisation in Halbleiter-Heterostrukturen wurde von einem zweidimensionalen System ausgegangen, in dem ein parabolisches Fallenpotential $U_{conf} = \frac{m_e}{2}\omega_0^2 \sum_{i=1}^N r_i^2$ die wenigen ($N = 1 \dots 30$) Elektronen entgegen ihrer wechselseitigen Coulomb-Abstoßung zusammenhält. Bei tiefen Temperaturen fand man eine Schalenstruktur - ähnlich der von Atomen. Die Teilchen ordnen sich zur Minimierung ihrer potentiellen Energie entlang des Äquipotentialverlaufs des äußeren Feldes in konzentrischen Schalen an, wobei jede Schale nur eine spezifische Anzahl von Ladungsträgern aufnehmen kann. Die Ausbildung der Schalen ist ein typischer Randeffect, d.h. die Symmetrie des Fallenpotentials prägt die Struktur des Clusters. Ein konkurrierender Effekt ist die in einem infiniten 2D-Kristall durch die Coulomb-Abstoßung begünstigte hexagonale Struktur des Wignergitters, bei der alle nächsten Nachbarn im äquidistanten Abstand voneinander positioniert sind (dichteste Kugelpackung).

Eine besondere Stellung nehmen die sogenannten magischen Cluster ein. Beispiele

⁴Das Korrespondenzprinzip besagt, dass die Aussagen der Quantentheorie für große Quantenzahlen mit den Aussagen der klassischen Physik übereinstimmen. [36]

⁵2D-Systeme bieten neben praktischen Erwägungen den Vorteil einer reduzierten Nullpunktsenergie der festen Phase. Für einen parabolisches Potential trägt jede Dimension mit $\frac{1}{2}\hbar\omega$ zur Nullpunktsenergie bei.

2. Stark korrelierte mesoskopische Coulomb-Systeme

hierfür sind die Cluster aus 10, 12, 16 oder 19 Elektronen (Abb. 2.2). Sie sind das mesoskopische Analogon zum Wigner-Kristall und durch das notwendige, aber nicht hinreichende Kriterium gekennzeichnet, dass die äußeren Schalen mit einem Vielfachen der Teilchenzahl der inneren Schalen besetzt sind.

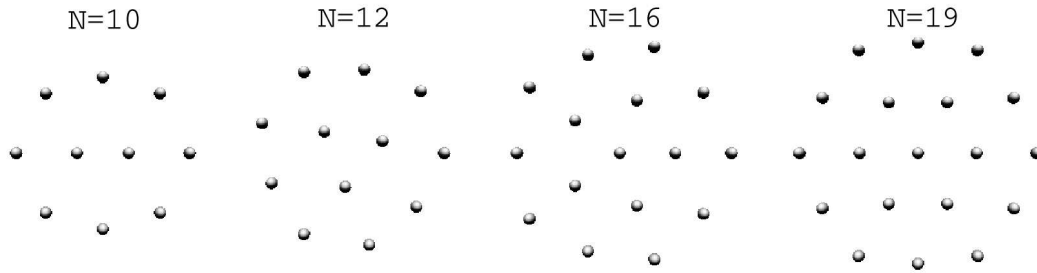


Abb. 2.2: Die magischen Cluster mit 10, 12, 16 und 19 Elektronen weisen eine hohe Symmetrie auf. Die Kristallstruktur magischer Cluster kommt der makroskopischer Wigner-Kristalle besonders nahe, (nahezu) jedes Elektron auf den inneren Schalen ist von sechs nächsten Nachbarn umgeben (Koordinationszahl ist 6). Besonders deutlich, d.h. am wenigsten durch das äußere Potential verzerrt, ist die hexagonale Gitterstruktur beim Cluster mit 19 Elektronen ausgeprägt, man beachte die parallele Ausrichtung der Teilchen.

Die Schalenbesetzungen der Grundzustände für die Teilchenzahlen $N=10$ bis 20 sind in Tabelle 2.1 gegeben. Die magischen Cluster sind mit einem Stern hervorgehoben. Der Anteil der Wechselwirkungsenergie der Elektronen U_{corr} an der Gesamtenergie ist doppelt so groß wie die Energie des Einschnürungspotentials U_{conf} . Infolge der gegenseitigen Coulomb-Abstoßung der Elektronen ist die Gesamtenergie des Clusters E für $N + 1$ Teilchen größer als bei N Teilchen.

Als besonders interessant stellte sich die sensitive Abhängigkeit der physikalischen Eigenschaften mesoskopischer Cluster von der genauen Teilchenzahl heraus, da diese die Struktur der Cluster bestimmt. Man fand, dass der Radial- und Rotationsmelzprozess unterschiedliche Schmelzkurven besitzen, wobei letztere in eminenter Abhängigkeit zur Kristallsymmetrie, also ob ein Cluster magisch oder nicht magisch ist, steht. Magische Cluster besitzen eine außergewöhnlich hohe Energiebarriere (Stabilität) bezüglich einer gegenläufigen Schalenrotation. [3]

Molekulardynamiksimulationen zeigen, dass bei einem Cluster aus 19 Elektronen

2.3 Charakteristika mesoskopischer Systeme in Quantenpunkten

N	Schalenbesetzung	U_{corr}	U_{conf}	E	E/N
10*	2,8	29,89962	14,94981	44,84943	4,484943
11	3,8	35,67424	17,83712	53,51136	4,864669
12*	3,9	41,91149	20,95575	62,86724	5,238936
13	4,9	48,54320	24,27160	72,81480	5,601138
14	4,10	55,61717	27,80858	83,42575	5,958982
15	5,10	63,07583	31,53791	94,61374	6,307583
16*	1,5,10	70,93229	35,46615	106,3984	6,649903
17	1,6,10	79,13956	39,56978	118,7093	6,982902
18	1,6,11	87,69768	43,84884	131,5465	7,308140
19*	1,6,12	96,67111	48,33556	145,0067	7,631930
20	1,7,12	105,9948	52,99742	158,9923	7,949613

Tab. 2.1: Schalenbesetzung, Wechselwirkungsenergie U_{corr} , Energie des externen Potentials U_{conf} , Gesamtenergie E sowie Gesamtenergie pro Teilchen E/N der Grundzustandskonfiguration eines 2D-Coulomb-Clusters in Abhängigkeit von der Teilchenzahl N . Die magischen Teilchenzahlen N sind mit einem Stern gekennzeichnet. Alle Energien sind in dimensionslosen Einheiten (s. Abschnitt 3.2). Die numerischen Grundlagen der Grundzustandsbestimmung sind in Kapitel 4 zu finden. Die Daten in der letzten Spalte konnten durch Vergleich mit Literaturwerten [13] zur Verifikation des eigenen MD-Codes herangezogen werden. Die Werte stimmen exakt überein.

die Teilchen unter einer kritischen Temperatur an ihren Gitterplätzen lokalisiert sind. Wird die Teilchenzahl um eins erhöht, so setzt aufgrund der asymmetrischen Schalenbesetzung eine gegenläufige Rotation der äußeren Schalen ein [38, 39, 40]. Es wurde somit nachgewiesen, dass mit der Zugabe eines Elektrons (Änderung der Symmetrie) der Übergang von einer nichtleitenden zu einer leitenden Nanostruktur - und umgekehrt - hervorgerufen werden kann. Ein wesentliches Ziel dieser Arbeit ist es zu untersuchen, ob auch in einem Zweischichtsystem durch Variation der Kopplungsstärke zweier vertikal angeordneter Quantenpunkte ein Strukturwandel hervorgerufen werden kann.

2. Stark korrelierte mesoskopische Coulomb-Systeme

2.3.2 Vertikal gekoppelte Quantenpunkte

Von besonderem Interesse in der gegenwärtigen Forschung sind Doppelschichtsysteme (Bilayer). In einem System vertikal gekoppelter Quantenpunkte steht ein zusätzlicher Freiheitsgrad zur Verfügung - der senkrechte Schichtabstand d . Dieser bewirkt eine interessante Konkurrenz zwischen den intra-dot Korrelationen einerseits und den inter-dot Korrelationen, die über den Parameter d einstellbar sind, andererseits.

Die Wigner-Kristallisation, die Grundzustände, das Anregungsspektrum und weitere Merkmale mesoskopischer Doppelschicht-Elektronen-Systeme wurden bereits von mehreren Gruppen theoretisch untersucht und offenbaren eine Vielfalt mesoskopischer Phänomene [4, 5, 6, 7].

Weitgehend unbekannt hinsichtlich der Kristallsymmetrien und der Anregungsspektren in Abhängigkeit vom Schichtabstand d sind hingegen die Eigenschaften mesoskopischer Elektron-Loch-Bilayer. Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist daher das Studium des Systemverhaltens eines bipolaren Elektron-Loch-Clusters im Grundzustand unter Berücksichtigung der exakten Coulomb-Wechselwirkung aller beteiligten Teilchen im klassischen Grenzfall.

3 Modell

In folgendem Kapitel wird das Modell aufgestellt. Zusätzlich werden wichtige Grenzfälle und Größen dargestellt und diskutiert.

Gegenstand der Untersuchung ist ein Zweischichtsystem aus zwei vertikal zueinander angeordneten, nulldimensionalen Halbleiter-Heterostrukturen (Quantenpunkten). Die Schichten sind jeweils ausschließlich mit positiven oder negativen Ladungsträgern (Löchern oder Elektronen) besetzt, welche durch ein kreissymmetrisches externes Potential zusammengespart sind (Abb. 3.3). Derartige Strukturen können experimentell realisiert werden, siehe beispielsweise Ref. [41].

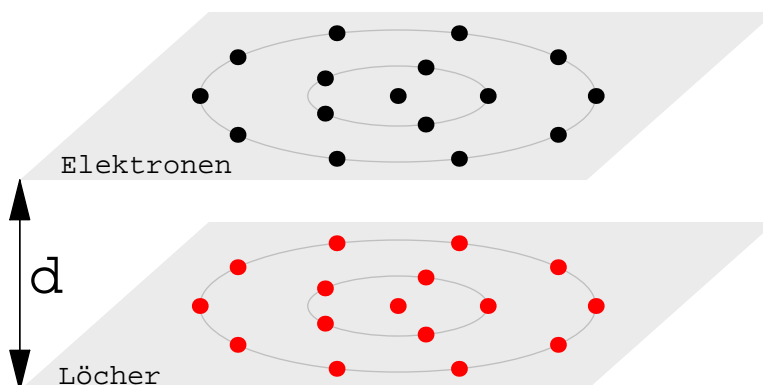


Abb. 3.3: Bipolare Elektron-Loch-Heterostruktur. Der senkrechte Abstand beider Schichten ist mit d gekennzeichnet. Die Anordnung der Teilchen folgt im Grundzustand weitestgehend dem kreisförmigen Einschnürungspotential. (Schematische Darstellung)

Interessante Gesichtspunkte dieses Systems sind die Konkurrenzerscheinungen der abstoßenden intra-layer Wechselwirkung der Elektronen (resp. Löcher) und der attraktiven inter-layer Elektron-Loch-Wechselwirkung, die zur Ausbildung von Elektron-Loch-Paaren (indirekter Exzitonen) führt, sowie die beiden Grenzfälle entkoppelter Schichten ($1/d \rightarrow 0$) und eines effektiven single-layer Dipolsystems ($d \rightarrow 0$).

3. Modell

3.1 Hamilton-Funktion

Wir betrachten ein System aus zwei gekoppelten zweidimensionalen Schichten (Quantenpunkten), die von Elektronen und Löchern populiert sind, welche via Coulomb-Potential wechselwirken. Das System sei bezüglich der Teilchenzahl und der Massen symmetrisch.

$$N_e = N_h = N_x = 2N, \quad m_e = m_h = m \quad . \quad (3)$$

Die beiden Quantenpunkte seien durch eine Barriere räumlich getrennt, so dass die Tunnelwahrscheinlichkeit und damit die Rekombination von Elektronen und Löchern stark eingeschränkt ist. Die gegenseitige Abstoßung der Elektronen (bzw. Löcher) wird durch ein für beide Quantenpunkte identisches, parabolisches Einschnürungspotential („confinement“) kompensiert, das die Teilchen radial zum Zentrum der Potentialmulde beschleunigt. Die Grundzustandsenergie dieses Systems ist durch seine Hamilton-Funktion H gegeben

$$H = H^e + H^h + H^{e-h} \quad , \quad (4)$$

worin $H^{e(h)}$ den Anteil einer einzelnen Schicht, d.h. eines Einschicht-Coulomb-Clusters beschreibt, während H^{e-h} die attraktive schichtübergreifende (inter-layer) Korrelation der Teilchen vermittelt. Ferner setzt sich der Term $H^{e(h)}$ aus der Coulomb-Wechselwirkungsenergie $U_{corr}^{e(h)}$ und dem Fallenpotential $U_{conf}^{e(h)}$ der Teilchen einer Schicht zusammen (Abb. 3.4). Für das holonome klassische System folgt

$$H^{e(h)} = U_{corr}^{e(h)} + U_{conf}^{e(h)} = \frac{q^2}{4\pi\epsilon} \sum_{i>j}^N \frac{1}{r_{ij}} + \frac{1}{2} m \omega_0^2 \sum_i^N r_i^2 \quad (5)$$

$$H^{e-h} = U_{corr}^{e-h} = -\frac{q^2}{4\pi\epsilon} \sum_i^{N_e} \sum_j^{N_h} \frac{1}{\sqrt{r_{ij}^2 + d^2}} \quad , \quad (6)$$

wobei d den Abstand der Schichten und r_{ij} die In-Layer-Projektion des Teilchenabstandes bezeichnet. Des Weiteren steht q für die Ladung der Teilchen, sowie ω_0 für die Frequenz des harmonischen Einschnürungspotentials.

Anmerkung: Die o.g. Gleichungen lassen sich durch Festlegen der Systemparameter q , m , ϵ auf weitere Coulomb-Systeme (z.B. Ionen in Fallen) übertragen. Am besten geschieht die Verallgemeinerung jedoch durch das Einführen dimensionsloser Größen (siehe auch Abschnitt 2.1).

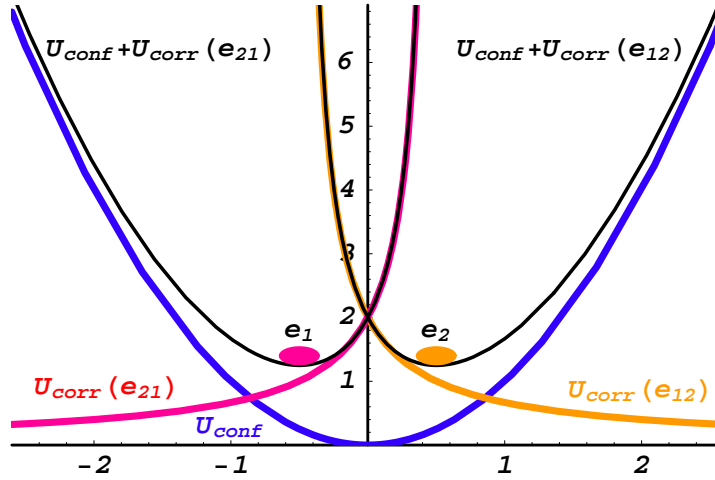


Abb. 3.4: Potentielle Energiebeiträge von 2 Elektronen in einer Schicht als Funktion der Teilchenposition. Die Grundzustandsenergie setzt sich aus dem harmonischen Fallenpotential U_{conf} und dem Coulomb-Potential U_{corr} zusammen, das aus der Wechselwirkung der Ladungsträger resultiert. Wird ein Teilchen ausgelenkt, so ändert sich die Gleichgewichtsposition des anderen Teilchens.

3.2 Entdimensionalisierung

Um die Hamilton-Funktion in einer einfachen dimensionslosen Form schreiben zu können, setzen wir $E_0 = q^2/4\pi\epsilon r_0 \equiv \frac{m}{2}\omega_0^2 r_0^2$ und erhalten folgende charakteristische Längen-, Energie- und Temperaturskalen

$$r_0 = (q^2/2\pi\epsilon m\omega_0^2)^{1/3} \quad (7)$$

$$E_0 = (m\omega_0^2 q^4/32\pi^2\epsilon^2)^{1/3} \quad (8)$$

$$T_0 = E_0/k_B \quad . \quad (9)$$

Nach der Transformation $\{r \rightarrow r/r_0, E \rightarrow E/E_0, d \rightarrow d/r_0\}$ lautet die Hamilton-Funktion

$$H = \sum_{i>j}^{N_e} \frac{1}{r_{ij}} + \sum_i^{N_e} r_i^2 + \sum_{i>j}^{N_h} \frac{1}{r_{ij}} + \sum_i^{N_h} r_i^2 - \sum_i^{N_e} \sum_j^{N_h} \frac{1}{\sqrt{r_{ij}^2 + d^2}} \quad . \quad (10)$$

Somit wird die Grundzustandsenergie nur noch durch die Anzahl der indirekten Exzitonen N_x und dem Abstand zwischen den Schichten beeinflusst.

3. Modell

Im Folgenden werden alle Energien pro Elektron-Loch-Paar exklusive der dimensionslosen vertikalen Elektron-Loch-Kopplungsenergie $1/d$ (Exziton-Bindungsenergie) angegeben. Sie sichert im klassischen Fall die exakte vertikale Ausrichtung der Elektron-Loch-Paare und ist von der Konfiguration des Clusters unabhängig.

3.3 Grenzfälle

Der Grundzustand des Systems wird von zwei konkurrierenden Effekten beherrscht:

- Die intra-layer Coulomb-Abstoßung der Teilchen, die „Wigner-Kristallisation“ in den Schichten bewirkt.
- Die anziehende inter-layer Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern, die zur Herausbildung von Exzitonen, bzw. Dipolen im klassischen Grenzfall, führt.

Die Besonderheit des vorliegenden Systems liegt gerade darin, dass durch Variation des Schichtabstandes d festgelegt werden kann, welcher der beiden Effekte dominiert. Für $d \gg a$ erhalten wir den Grenzfall unabhängiger Schichten, der sich darin ausdrückt, dass die Korrelationsenergie des Systems durch die intra-layer Coulomb-Wechselwirkung der Teilchen bestimmt ist. Im Grenzfall $d \ll a$ finden wir eine Schicht effektiv wechselwirkender Dipole. Der Übergang von intra-layer *Coulomb-Wechselwirkung* zur intra-layer *Dipol-Dipol-Wechselwirkung*, bzw. die Kopplung beider Schichten, kann über den relativen Schichtabstand $\delta = d/a(d)$ als das Verhältnis von Schichtabstand d und mittlerem planaren Teilchenabstand $a(d)$ parametrisiert werden.

3.4 Mittlerer Teilchenabstand

Die Analyse der Grundzustandskonfigurationen des Elektron-Loch-Doppelschichtsystems offenbart eine starke Abhängigkeit des mittleren Teilchenabstandes in jeder Schicht $a(d)$ vom Schichtabstand d (siehe Abb. 3.5). Analytisch kann der mittlere Teilchenabstand a nur in impliziter Form als Funktion $a = a(\delta)$ geschrieben werden. Für die Grenzfälle kleiner und großer δ kann die Gleichung jedoch entwickelt und bei Abbruch nach dem ersten Glied nach a aufgelöst werden. Im Limes sehr kleiner bzw. sehr großer Schichtabstände d findet man, dass $a(d)$ in unterschiedlichem exponentiellen Zusammenhang zur Teilchenmasse m , Ladung e und der Frequenz des

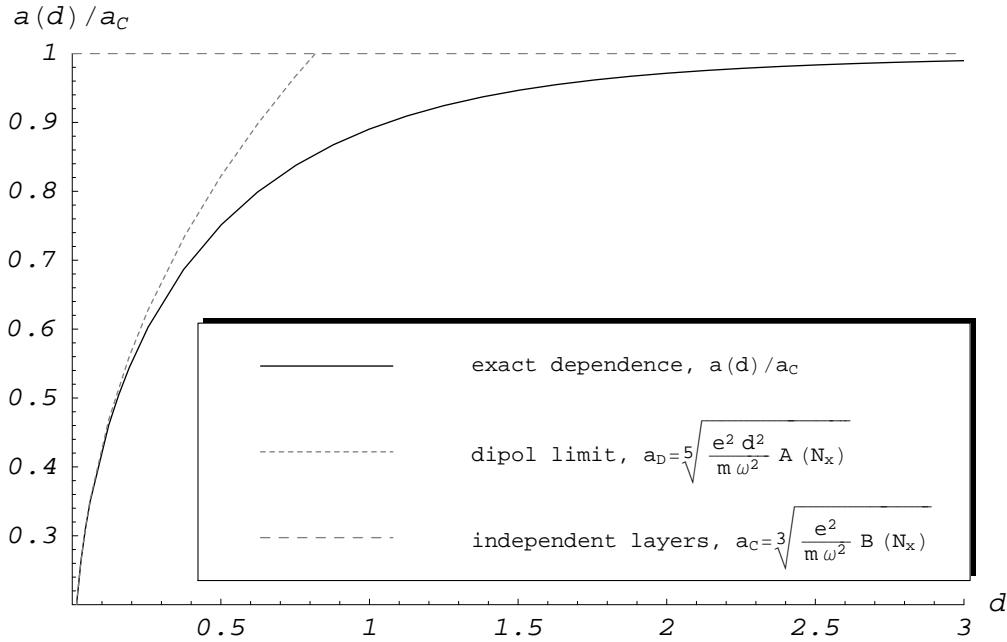


Abb. 3.5: Mittlerer planarer Teilchenabstand $a(d)$ im Grundzustand als Funktion des Schichtabstandes d (a in Einheiten von a_C). Es gibt zwei Grenzfälle: (I) $d \ll 1$, $a(d)$ wird nur durch die Dipol-Dipol Wechselwirkung bestimmt. Mittlerer Teilchenabstand ist a_D , (II) $d \gg 1$, die intra-layer Coulomb-Wechselwirkung dominiert. Mittlerer Teilchenabstand ist a_C . Man beachte die unterschiedlichen Potenzfunktionen von $a(d)$ in beiden Grenzfällen. (Abb. aus Poster [16]).

harmonischen Fallenpotentials ω_0 steht:

$$a_D(d) = \sqrt[5]{\frac{e^2 d^2}{m \omega_0^2} A(N_x)} \quad , \quad (11)$$

$$a_C(d) = \sqrt[3]{\frac{e^2}{m \omega_0^2} B(N_x)} \quad , \quad (12)$$

wobei $A(N_x)$ und $B(N_x)$ Konstanten sind, die von der Anzahl der Elektron-Loch-Paare N_x abhängen.

Im Limes $\delta \ll 1$ wird $a(d) = a_D(d)$ nur durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung bestimmt und strebt mit kleiner werdendem d gegen Null. Gleichung (11) impliziert zudem, dass der relative Schichtabstand $\delta = d/a(d) \sim d^{3/5}$ langsamer als linear mit d gegen Null geht. Einen Vergleich der „exakten“ Lösung für den mittleren

3. Modell

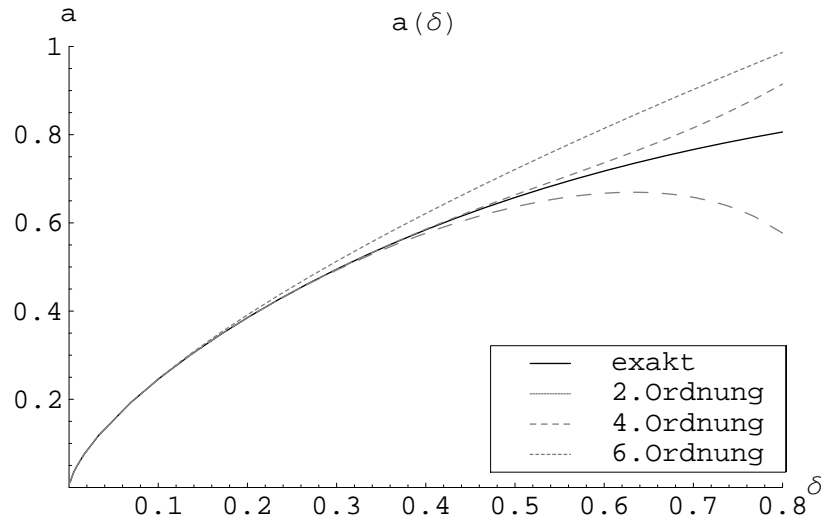


Abb. 3.6: Mittlerer Exzitonenabstand a als Funktion des relativen Schichtabstandes δ . Neben der numerisch bestimmten „exakten“ Lösung für $a(\delta)$ sind die Dipol-Näherung (2. Ordnung) sowie die Näherungsergebnisse für die Glieder höherer Ordnung gezeigt, bei denen die Gleichung $a = a(\delta)$ nach δ entwickelt wurde. Berechnet für Wechselwirkung zweier Elektron-Loch-Paare (dimensionslose Einheiten).

Teilchenabstand a mit der Dipol-Näherung zeigt, dass man ab etwa einem relativen Schichtabstand von $\delta \gtrsim 0,3$ von einem Dipol-System sprechen kann (siehe Abb. 3.6).

Für Schichtabstände $\delta > 1$ kommt es aufgrund eines Korrekturterms der Ordnung $\mathcal{O}(-1/\delta^3)$ zu einer schnellen Konvergenz von $a(\delta)$, bzw. $a(d)$, gegen a_C (siehe Abb. 3.5).

3.5 Energien

Die bisherigen Betrachtungen sollen auf die charakteristische Energie des Systems erweitert werden. Von besonderem Interesse als Maß für die effektive Wechselwirkung der Teilchen ist die Korrelationsenergie U_{corr} . Nicht berücksichtigt wird hierbei der Anteil der Elektron-Loch-Paarbindungsenergie $-N_x/d$ (dimensionslose Einheiten).

Entwickelt man die Korrelationsenergie U_{corr} für $\delta \ll 1$ und $\delta \gg 1$, so erhält man für den Grenzfall des Dipol-Systems, bzw. den Grenzfall unabhängiger Schichten,

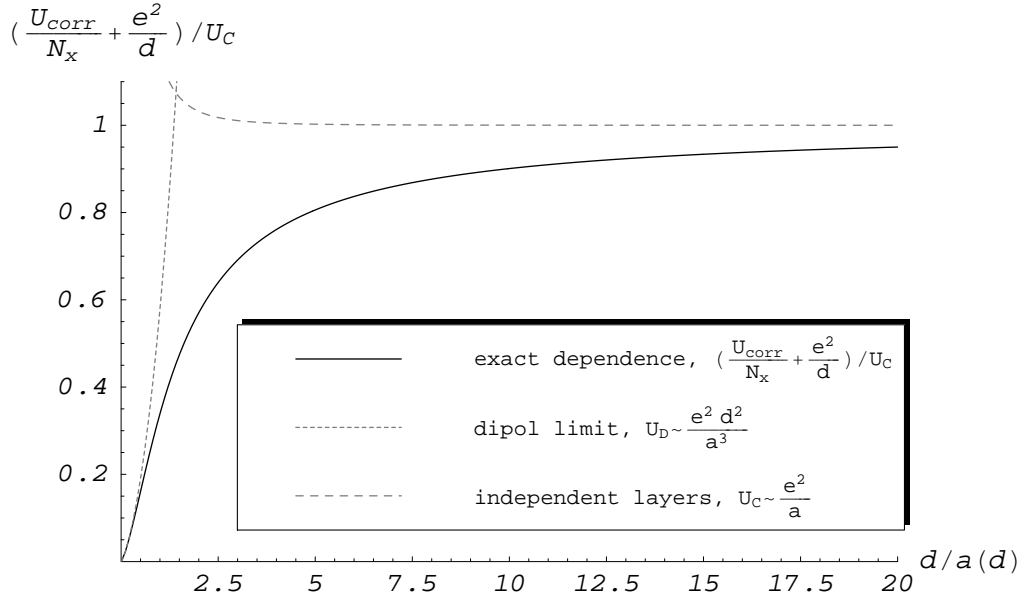


Abb. 3.7: Korrelationsenergie pro Elektron-Loch-Paar und ohne Paarbindungsenergie für verschiedene Schichtabstände d . (Energie in Einheiten von $U_C(d \rightarrow \infty)$, Schichtabstand in Einheiten von $a(d)$). Die Abbildung vergleicht die exakte Korrelationsenergie mit den Grenzfällen: (I) $\delta \ll 1$, eine Schicht aus Dipolen, $U_D \sim \frac{e^2 d^2}{a^3}$ und (II) $\delta \gg 1$, unabhängige Schichten, $U_C \sim \frac{e^2}{a}$. Eingesetzt wurden jeweils die „exakten“, Werte für $a(d)$ (s. Abb. 3.5). Beide Approximationen sind nur für den Bereich $d \ll 1$ (U_D) bzw. $d \gg 1$ (U_C) anwendbar. (Abb. aus Poster [16]).

folgende Approximationen:

$$U_D = \frac{e^2 d^2}{a^3} C(N_x) \quad , \quad (13)$$

$$U_C = \frac{e^2}{a} D(N_x) \quad , \quad (14)$$

mit den Konstanten $C(N_x)$ und $D(N_x)$, die wiederum durch die Anzahl der Elektron-Loch-Paare bestimmt sind (siehe Abb. 3.7).

Für $\delta < 1$ dominiert die Inter-Layer-Korrelation gegenüber der Intra-Layer-Wechselwirkung der Teilchen und führt zur Ausbildung von Dipolen, die durch das Dipolmoment $\mu = ed$ bestimmt sind. Die Dipol-Dipol-Wechselwirkung der Elektron-Loch-Paare fällt mit der dritten Potenz des Abstandes ab (Gl. 13) und ist somit wesentlich

3. Modell

kurzreichweitiger als die Coulomb-Wechselwirkung (Gl. 14). Des Weiteren führt eine Verringerung des Schichtabstandes d zur Verkleinerung des Dipolmoments μ und damit zur Abnahme des abstoßenden Potentials. Insgesamt resultiert daraus ein zu kleineren Schichtabständen hin kleiner werdender mittlerer Teilchenabstand $a(d)$ (siehe Abb. 3.5 und 3.6).

Im Limes großer Schichtabstände sorgt der Korrekturterm der Ordnung $\mathcal{O}(1/\delta)$ für eine langsame Konvergenz der Korrelationsenergie gegen den Grenzwert U_C (siehe Abb. 3.7). Der Grenzwert U_C ist mit der Korrelationsenergie des Einschichtsystems identisch.

Eine Besonderheit des betrachteten Systems liegt in seiner Rotationsinvarianz, die aus der Kreissymmetrie der Hamilton-Funktion folgt. Eine Drehung des Gesamtsystems um das Zentrum ($r = 0$) verändert die Energie nicht. Insofern können Grundzustandskonfigurationen, die durch Drehung ineinander überführt werden können, als identisch betrachtet werden. Des Weiteren treten aufgrund der Symmetrie der Hamilton-Funktion asymmetrische Konfiguration stets paarig auf. Diese Konfigurationen besitzen identische Energien und lassen sich durch Spiegelung ineinander überführen.

4 Grundlagen: Molekulardynamik-Simulationen mesoskopischer Systeme

In diesem Kapitel wird eine Beschreibung des verwendeten Verfahrens zur Untersuchung der Grundzustände und Bestimmung möglicher Strukturübergänge gegeben. Dabei wird auf die Methode des „Simulated Annealing“ sowie die theoretischen und numerischen Aspekte der MD-Simulationen eingegangen. Weiterhin wird auch das MD-Visualisierungs-Programm DAVI vorgestellt, das für die einfache und komfortable Auswertung der Grundzustandskonfigurationen entwickelt wurde, sich aber auch zur Visualisierung dynamischer Bewegungsabläufe anbietet.

4.1 Problematik der Grundzustandsbestimmung

Bei Betrachtung von mesoskopischen Systemen bei geringen Temperaturen ($\Gamma \gg 1$) zeigen sich eine ganze Reihe von Zuständen (Teilchenkonfigurationen), die durch das Kräftegleichgewicht $\vec{F}_{\{i\}} = \vec{F}_{corr\{i\}} + \vec{F}_{conf\{i\}} = 0$, $i = 1 \dots N$ gekennzeichnet sind.⁶ Diese Gleichgewichtszustände stimmen mit einem lokalen Minimum der potentiellen Energie überein und sind in der Regel durch Energiebarrieren voneinander getrennt. Ihre Bindungsenergien sind im Allgemeinen verschieden. Das globale Minimum der Energie entspricht dem Grundzustand des Systems. Die korrespondierende Konfiguration wird als stabil und die der anderen Energieminima als metastabil bezeichnet.

Das Aufsuchen der energetischen Minimalkonfigurationen kann als ein Optimierungsproblem in einem hochdimensionalen Konfigurationsraum formuliert werden, über dem die potentielle Energie des Clusters als eine Energiehyperfläche (*Potential Energy Surface*, PES) aufgetragen ist. Die Dimensionalität des Konfigurationsraumes entspricht den geometrischen Freiheitsgraden.

Die Aufgabe besteht nun genau darin, das globale Minimum auf der äußerst komplex geformten und unbekanntem Energiefläche zu bestimmen, bzw. die optimale Lösung für ein hochdimensionales Gleichungssystem zu finden. Bei der Lösung dieser Aufgabe stellt es sich als große Schwierigkeit heraus, dass sich auf dieser Ener-

⁶Analog zur Indizierung der Potentiale U_{conf} und U_{corr} sei \vec{F}_{conf_i} die auf das i -te Teilchen radial zum Zentrum gerichtete Kraft des Fallenpotentials und \vec{F}_{corr_i} die aus der Coulomb-Wechselwirkung mit den anderen Teilchen hervorgehende Kraft.

4. Grundlagen: Molekulardynamik-Simulationen mesoskopischer Systeme

gieoberfläche viele lokale Minima befinden, deren Anzahl mindestens exponentiell mit der Teilchenzahl N wächst [24].

Ein Scannen der gesamten Fläche stellt sich aufgrund des hohen Rechenaufwandes als nicht realisierbar dar. Die Verwendung herkömmlicher Optimierungstechniken, wie Steepest Descent Method, Conjugate Gradient Method, etc., ist problematisch, da diese dazu tendieren, ins nächstgelegene lokale Minimum zu laufen und sich dort zu verfangen. Der wiederholte Neustart dieser Verfahren mit zufällig erzeugten Startlösungen erreicht oft keine zufriedenstellenden Ergebnisse. Es gilt daher ein Verfahren zu finden, welches es ermöglicht, die Energiefläche effektiv zu „sampeln“. Eine Möglichkeit zur Optimierung von Lösungen in multidimensionalen Suchräumen stellt die Methodik der „*Simulierten Abkühlung*“ („*Simulated Annealing*“) dar.

4.2 Lösungsansatz: Simulated Annealing

Neben der *Randomization Minimization* (Monte Carlo) hat sich *Simulated Annealing* als eine Technik der Molekulardynamik⁷ zur systematischen Bestimmung des Grundzustandes eines Vielteilchensystems bewährt.

Der Begriff Simulated Annealing ergibt sich aus der Beobachtung des Kristallisationsprozesses in der Natur⁸. Man weiß, dass bei der Abkühlung von Flüssigkeiten Kristalle unterschiedlicher Größe entstehen können. Entsprechend der Kristallisationsgeschwindigkeit werden sehr unterschiedliche lokale Minima der Energie erreicht. Bei schneller Abkühlung bewegt sich das System rasch in ein lokales Minimum mit relativ hoher Energie und bleibt dort hängen, während bei ausreichend langsamer Abkühlung das globale Energieminimum erreicht werden kann.

Der entscheidende Vorteil des Simulated Annealing liegt darin begründet, dass dieser Algorithmus, im Gegensatz zu anderen Verfahren, aus lokalen Minima wieder herausfindet. Die Konvergenz dieses Verfahrens wurde mathematisch bewiesen, d.h. es wurde gezeigt, dass bei unendlich langer Abkühlzeit das globale Minimum mit der Wahrscheinlichkeit *eins* gefunden wird [22]. In der Praxis ist dies jedoch unrealistisch und „schnelleres“ Abkühlen notwendig, so dass bei endlicher Abkühlzeit nicht garantiert werden kann, dass tatsächlich die Minimalkonfiguration ermittelt wurde.

⁷Häufig werden allerdings auch Metropolis Algorithmen, welche die Temperatur des Systems berücksichtigen, als Simulated Annealing bezeichnet, als Beispiel seien hier die Markov Random Field (MRF) - Modelle genannt.

⁸Es soll an dieser Stelle nicht unterschlagen werden, dass in der Natur der quantenmechanische Tunneleffekt den Übergang in den Grundzustand begünstigt.

In Molekulardynamik-Simulationen können sich die Teilchen auf der PES nicht nur „abwärts“, sondern entsprechend ihrer Temperatur auch „aufwärts“ bewegen und sich damit aus den lokalen Minima wieder befreien. Durch die dynamische Bewegung der Teilchen wird die Energiefläche effektiv gesampelt.

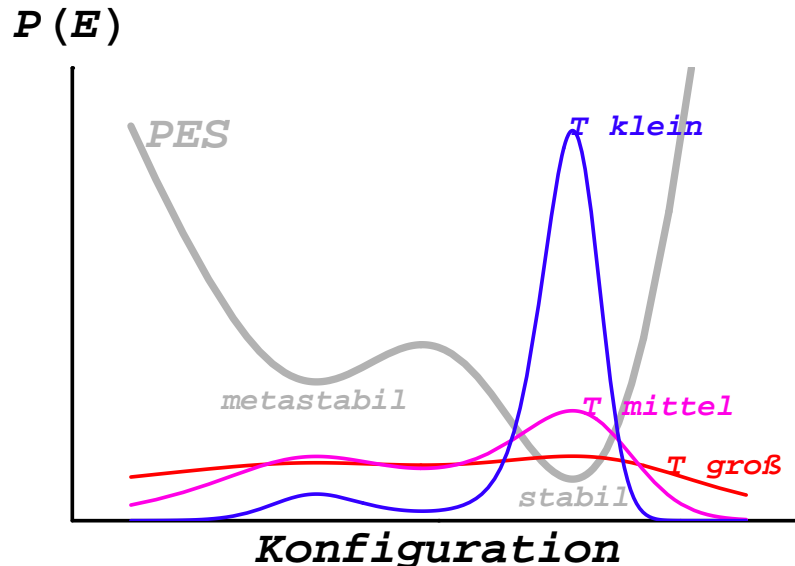


Abb. 4.8: PES und Boltzmann-Verteilung für verschiedene T über dem Konfigurationsraum, schematische Darstellung.

Befindet sich ein System, das einer Boltzmann-Verteilung gehorcht, im Gleichgewicht, so wird jeder Punkt im Konfigurationsraum (gemäß seiner Energie) mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit populiert. Die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten eines Zustandes hängt dabei exponentiell von dessen Energie ab

$$P(E) \sim e^{-E/T} \quad , \quad (15)$$

wobei E die Energie des Zustandes und T die Temperatur des Systems bezeichnet. In Abb. 4.8 ist die Boltzmann-Verteilung für drei verschiedene Temperaturen über einer (fiktiven) Energiehyperfläche dargestellt. Es ist zu erkennen, dass das Verfahren des simulierten Abkühlens stochastisch gegen das absolute Minimum konvergiert:

- Bei sehr hoher Temperatur „sehen“ die Teilchen kein Potential und der Konfigurationsraum ist gleichmäßig besetzt.
- Wird die Temperatur erniedrigt, bildet die Wahrscheinlichkeitsverteilung in den Minima der Energiefunktion ihre Maxima aus. Das System geht dazu über,

4. Grundlagen: Molekulardynamik-Simulationen mesoskopischer Systeme

bevorzugt die verschiedenen Minima zu besetzen, wobei die Verweildauer in Abhängigkeit zur „Tiefe“ des Potentials steht.

- Bei weiter sinkender Temperatur nimmt die Wahrscheinlichkeit für das Aufsuchen lokaler Minima ab (Annealing). Der Mechanismus der gelegentlichen Akzeptanz energetisch schlechterer Konfigurationen verhindert das Verharren in einem der lokalen Optima. Damit der Algorithmus immer wieder einen Ausweg aus lokalen Minima findet, muss der Abkühlungsprozess, bzw. das Sinken der Wahrscheinlichkeit, möglichst langsam stattfinden.
- Strebt T gegen null, zeigt die Verteilungsfunktion $P(E)$ einen einzigen Peak im globalen Minimum. (Nicht dargestellt.)

Das Abbruchkriterium verhindert jedoch eine exakte Lösung, d.h. es kann lediglich eine Approximation erreicht werden. Gemäß der Geschwindigkeit, mit welcher die Temperatur T gegen null abgesenkt wird, gibt es aber eine hohe Wahrscheinlichkeit, dass sich das System bei Abbruch im Grundzustand befindet.

Warum ist langsames Abkühlen des Systems notwendig? Wird beim Abkühlen ein relatives Minimum erreicht, so müssen die Teilchen einen bestimmten Energiebetrag aufnehmen können, um ein nahes Maximum erreichen und die Potentialbarrieren überwinden zu können. Durch die Wahrscheinlichkeitsverteilung kann dieser Energiebetrag bei langsamen Abkühlen mit ausreichend hoher Wahrscheinlichkeit aufgenommen werden. Wird aber zu schnell gekühlt, ist die Temperatur bei Erreichen des lokalen Minimums schon stark abgefallen und es steht nicht mehr genügend kinetische Energie für das Überwinden der Energiebarrieren zur Verfügung. Der Algorithmus steckt dann im ersten lokalen Minimum, das er findet, fest.

4.3 Molekulardynamik-Simulationen

Computersimulationen stellen eine Erweiterung der klassischen Wissenschaftsmethodologie dar und haben sich als wichtiges Bindeglied zwischen der „reinen“ theoretischen Physik und der Experimentalphysik etabliert. Der Simulationsbegriff bezeichnet eine Problemlösungsmethode auf Basis von Modellexperimenten und schließt im weiteren Sinne die Modellbildung mit ein.

Insbesondere molekulardynamische Simulationsmethoden eröffnen einen probaten Zugang zu mikroskopischen Informationen in einem übersichtlichen Modell, das zu jedem Zeitpunkt alle benötigten Daten zur Verfügung stellt. Dabei bieten Simulationen die Möglichkeit, ein physikalisches System für ganze Parameterscharen zu

untersuchen und in Bereiche vorzustößen, die experimentell nur schwer zugänglich sind.

Es ist allerdings zu bedenken, dass rechnergestützte Simulationen klar von einem Experiment zu unterscheiden sind, da keine Messungen an einem realen System vorgenommen werden, sondern an einem Modellsystem. Deshalb ist stets kritisch zu hinterfragen, ob das gewählte Modell die Natur im Hinblick auf die konkrete Fragestellung hinreichend genau abbildet. [21]

Die Hauptaufgabe bei der Implementierung der Molekulardynamik-Simulation liegt in der sinnvollen Wahl eines Verfahrens zur numerischen Integration des Differentialgleichungssystems der Bewegungsgleichung, da der Integrator die Genauigkeit der Simulationsergebnisse, bzw. die dafür notwendige Rechenzeit, entscheidend beeinflusst.

4.3.1 Begriffsbildung

Die Molekulardynamik verfolgt den Ansatz, die zeitliche Entwicklung eines Systems aus Massepunkten gemäß den Newton'schen Bewegungsgleichungen numerisch zu integrieren. Sie verknüpft dabei die Propagation des Systems im Phasenraum mit dem treibenden Kraftfeld. Die Entwicklung des Systems ist eindeutig durch seine Anfangsbedingungen bestimmt. Doch schon bei drei Körpern sind die Bewegungsgleichungen nicht mehr analytisch exakt lösbar.

Der Mikrozustand eines klassischen Systems ist durch die Angabe eines vollständigen Satzes mikroskopischer Variablen (Impulse, Koordinaten) von der Größenordnung der Teilchenzahl N festgelegt. Aus thermodynamischer Sicht ist der Zustand des Systems hingegen durch einige wenige Zustandsgrößen bestimmt. Dieser Makrozustand ist im Allgemeinen mit sehr vielen verschiedenen Mikrozuständen vereinbar. Die Gesamtheit der bei der MD-Simulation realisierbaren Mikrozustände wird als mikrokanonisches Ensemble bezeichnet (auch NVE - konst. Teilchenzahl N , konst. Volumen V und konst. Energie E).⁹ Da in dem simulierten abgeschlossenen Modellsystem die Energie eine Konstante der Bewegung ist ($dH/dt = 0$), d.h. das System den durch die Spezifikation des Ensembles definierten Bereich des Phasenraumes nicht verlässt, sind folglich die kinetische und potentielle Energie zeitlich fluktuierende Größen.

⁹Beim kanonischen Ensemble (NVT - konst. Teilchenzahl N , konst. Volumen V und konst. Temperatur T) ist ein zusätzlicher (fiktiver) Freiheitsgrad für die Wechselwirkung mit einem Wärmebad zur Kontrolle der Temperatur notwendig.

4. Grundlagen: Molekulardynamik-Simulationen mesoskopischer Systeme

Im Gleichgewicht sind die thermodynamischen (makroskopischen) Beobachtungsgrößen zeitunabhängig. Bei der Bestimmung von Mittelwerten, wie der Temperatur, ist es deshalb gleichgültig, ob man den (mikrokanonischen) Ensemble-Mittelwert oder den zeitlichen Mittelwert über die nacheinander auftretenden Mikrozustände eines einzigen isolierten Systems bildet [23]. Ergodisches Verhalten ermöglicht es, statistische Methoden auf MD-Simulation kleiner (mikrokanonischer) Ensembles anzuwenden. Da die Energie eine Konstante der Bewegung ist, erhält man aus den Trajektorien Mittelwerte der mikrokanonischen Gesamtheit.

Soll die Theorie des Simulated Annealing, welche ein temperiertes System voraussetzt (NVT), durch mikrokanonische Simulationen (NVE) realisiert werden, kann nicht vorausgesetzt werden, dass die Temperatur in beiden Gesamtheiten dasselbe bedeutet, denn bei der Betrachtung endlicher Systeme gilt die Äquivalenz des mikrokanonischen und des kanonischen Ensembles nicht mehr. Der Zusammenhang zwischen mittlerer kinetischer Energie und der Temperatur im mikrokanonischen Ensemble wurde von E.M. Pearson *et. al.* abgeleitet

$$k_B T = \frac{1}{\left(\frac{f}{2} - 1\right) \langle \frac{1}{K} \rangle} \quad .$$

Dabei bezeichnet K die kinetische Energie und f die Anzahl der Freiheitsgrade des Systems. Demnach ist die mikrokanonische Temperatur umgekehrt proportional zur mittleren reziproken kinetischen Energie. Ferner lässt sich zeigen, dass der Unterschied zu der mit Hilfe des Gleichverteilungssatzes¹⁰ $k_B T = 2\langle K \rangle / f$ bestimmten Temperatur mit der Ordnung $\mathcal{O}(1/N)$ verschwindet, so dass sich selbst für sehr kleine Teilchenzahlen ($N = 10$) nur eine Abweichung von nur wenigen Prozent ergibt. Für die ausführliche Darstellung sei an dieser Stelle auf Referenz [25] verwiesen.

4.3.2 Allgemeine Propagationsgleichungen

Ausgehend von der Hamilton-Funktion $H(p, q) = \frac{p^2}{2m} + U(q)$ lässt sich die Dynamik für ein System von N Teilchen mit den generalisierten Koordinaten der Orte $q \equiv (\vec{q}_1, \dots, \vec{q}_N)$ und Impulse $p \equiv (\vec{p}_1, \dots, \vec{p}_N)$ durch die Hamilton'schen Bewegungsgleichungen beschreiben

$$\begin{aligned} \frac{\partial H}{\partial p} &= \frac{d}{dt} q \equiv \dot{q} \\ -\frac{\partial H}{\partial q} &= \frac{d}{dt} p \equiv \dot{p} \quad . \end{aligned} \tag{16}$$

¹⁰Die Gültigkeit des Gleichverteilungstheorems beschränkt sich auf das kanonische Ensemble.

Äquivalent dazu kann in einem System aus N Teilchen der Masse m_i , in dem die Kraft \vec{F}_i auf das i -te Teilchen wirkt, nach den klassischen (Newton'schen) Bewegungsgleichungen formuliert werden

$$m_i \frac{d^2}{dt^2} \vec{q}_i = \vec{F}_i \quad , i = 1, \dots, N \quad . \quad (17)$$

In D -Dimensionen ist dies ein System von DN inhomogenen linearen Differentialgleichungen zweiter Ordnung, das nach der Theorie gewöhnlicher Differentialgleichungen in ein System von $2DN$ Differentialgleichungen erster Ordnung mit den Koordinaten \vec{q}_i und den Geschwindigkeiten \vec{v}_i , bzw. den Impulsen $\vec{p}_i \equiv m_i \vec{v}_i$ überführt werden kann

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \vec{q}_i &= \vec{v}_i \quad , \\ m_i \frac{d}{dt} \vec{v}_i &= \vec{F}_i \quad . \end{aligned} \quad (18)$$

Für den Fall konservativer Kräfte lassen sich diese aus dem Gradienten der potentiellen Energie bestimmen

$$\vec{F}_i = - \frac{\partial}{\partial \vec{q}_i} U(\vec{q}_1, \dots, \vec{q}_N) \quad . \quad (19)$$

Um die Zeitentwicklung der Koordinaten q , als auch der Geschwindigkeit v (bzw. der Impulse p) zu verfolgen, gilt es, das Gleichungssystem Gl. (16) bzw. Gl. (18) zu integrieren. Bei Kenntnis aller Positionen und Geschwindigkeiten der Massepunkte, sowie sämtlicher Kräfte zum Zeitpunkt t ergeben sich die neuen Koordinaten zum Zeitpunkt $t' = t + \delta t$:

$$\begin{aligned} \vec{q}_i(t') &= \vec{q}_i(t) + \int_t^{t'} \vec{v}_i(\tau) d\tau \quad , \\ \vec{v}_i(t') &= \vec{v}_i(t) + \int_t^{t'} \frac{\vec{F}_i(\tau)}{m_i} d\tau \quad . \end{aligned} \quad (20)$$

Da ein numerisches Modell entwickelt werden soll, muss die Integration der Phasenbahn auf einem Zeitgitter mit endlicher Gitterweite h diskretisiert werden. Dabei verlangt die Berechnung der Kräfte zu jedem Zeitschritt die Berücksichtigung aller $N(N-1)/2 \sim \mathcal{O}(N^2)$ Paarwechselwirkungen und ist damit der rechenaufwendigste Teil der MD-Simulation. Im Falle mesoskopischer Systeme liegt es jedoch im Bereich des technisch Möglichen, alle Korrelationsterme exakt zu erfassen, ohne dass diesbezüglich Näherungen getroffen werden müssen.

4. Grundlagen: Molekulardynamik-Simulationen mesoskopischer Systeme

Wir benötigen also ein numerisches Lösungsverfahren, mit welchem sich die Bewegungsgleichungen der Molekulardynamik lösen lassen und das mit Blick auf die Umsetzung in einer Simulation, praktischerweise auch bezüglich der Rechenzeit günstig zu wählen ist.

4.3.3 Integration der Bewegungsgleichungen

Die Diskussion des verwendeten Integrationsalgorithmus wird an einer gewöhnlichen Differentialgleichung erster Ordnung durchgeführt¹¹

$$y' \equiv \frac{dy(x)}{dx} = f(x, y) \quad . \quad (21)$$

Eine eindeutige Lösung¹² ergibt sich durch die Spezifizierung des Anfangswertes der gesuchten Funktion

$$y(x_0) = y_0 \quad . \quad (22)$$

Um ein solches Anfangswertproblem einer numerischen Lösung zugänglich zu machen, ist zunächst eine Diskretisierung mit der Schrittweite $h > 0$ erforderlich: $x_n = x_0 + nh$ und $y_n = y(x_n)$.

Das einfachste Integrationsverfahren, die Euler-Integration, schätzt den Zuwachs der Funktion über das Diskretisierungsintervall mit Hilfe des Differenzenquotienten

$$y'(x_n) = \frac{y_{n+1} - y_n}{h} = f(x_n, y_n) \quad (23)$$

ab. Ausgehend vom Punkt x_n erhält man als Approximation für die Lösung am Punkt $x_{n+1} = x_n + h$

$$y_{n+1} = y_n + hf(x_n, y_n) + \mathcal{O}(h^2) \quad . \quad (24)$$

Der Euler-Algorithmus ist nicht symmetrisch, weil die Ableitung nur am Anfang des Integrationsintervalls ausgewertet wird. Der (lokale) Fehler beträgt $\mathcal{O}(h^2)$ pro Integrationsschritt. Will man die Lösung durch Euler-Schritte über ein endliches Intervall $[a, b] \equiv [x_0, x_N]$ propagieren, so skaliert die Anzahl der Schritte wie $N =$

¹¹Dies ist dadurch gerechtfertigt, dass sich gewöhnliche Differentialgleichungen stets auf ein Differentialgleichungssystem erster Ordnung zurückführen lassen.

¹²Die notwendige *Existenz und Eindeutigkeit* der Lösung dieses Anfangswertproblems ist dann in einer Umgebung von x_0, y_0 gesichert, wenn $f(x, y)$ und $\nabla_y f(x, y)$ in einer Umgebung von x_0, y_0 stetige Funktionen beider Argumente x und y sind.

$(b-a)/h$ mit der Schrittweite der Diskretisierung. Der Gesamtfehler von y_N skaliert wie $\mathcal{O}(h)$, also linear mit der Schrittweite¹³, weshalb das Euler-Verfahren schon bei geringen Intervalllängen recht ungenaue Werte liefert.

In der Praxis ist die Effizienz eines Algorithmus, gegeben durch das Verhältnis von Rechengenauigkeit und Rechenaufwand, ein entscheidendes Kriterium für die Auswahl des Algorithmus. Deshalb ist bei rechenintensiven Funktionsevaluierungen $f(x, y)$, wie der Kräfteberechnung in der MD, die notwendige Anzahl von Funktionsaufrufen N_{eval} , um eine vorgegebene Rechengenauigkeit γ zu erzielen, ausschlaggebend.

Es stellt sich daher die Frage, inwiefern sich die Effizienz durch den Einsatz eines Verfahrens höherer Ordnung steigern lässt? Dazu folgende (grobe) Abschätzung des Rechenaufwandes bei Veränderung der Ordnung p des Verfahrens:

Der globale Fehler skaliert mit $\gamma \sim h^p$, d.h. für ein Verfahren der Ordnung p führt eine Verkleinerung der Schrittweite h um den Faktor 2 (bzw. 10) zu einer Verkleinerung des Gesamtfehlers um den Faktor 2^p (bzw. 10^p). Geben wir einen maximalen Fehler γ vor, so ist die Schrittweite $h \sim \gamma^{1/p}$ erforderlich. Mit $N \sim 1/h$ folgt für die Anzahl der Funktionsaufrufe $f(x, y)$

$$N_{eval} = pN \sim p\gamma^{-1/p} \quad , \quad (25)$$

unter Berücksichtigung, dass für ein Verfahren der Ordnung p mindestens p Funktionsevaluierungen für jeden Integrationsschritt notwendig sind.

Am konkreten Beispiel für $\gamma = 10^{-5}$ zeigt sich (Tab. 4.2), dass sich durch Einsatz eines Verfahrens höherer Ordnung der Rechenaufwand drastisch reduzieren lässt. Eines der Standardverfahren zur iterativen Lösung von gewöhnlichen Differentialgleichungen ist deshalb das *Runge-Kutta-Verfahren* vierter Ordnung.

p	1	2	3	4	5	6
N_{eval}	100000	632	139	71	50	41

Tab. 4.2: Abschätzung: Anzahl der Funktionsevaluierungen N_{eval} als Funktion der Ordnung p des Verfahrens bei vorgegebener Rechengenauigkeit. $\gamma = 10^{-5}$.

4.3.3.1 Runge-Kutta-Methode In Anlehnung an das Verfahren von Euler kann der Prognosewert verbessert werden, indem der für die lineare Fortbeschreibung

¹³Allgemein gilt, dass die Ordnung des integrierten (globalen) Fehlers um eins niedriger ist als die Ordnung des lokalen Fehlers.

4. Grundlagen: Molekulardynamik-Simulationen mesoskopischer Systeme

(Gl. 24) benutzte Steigungswert nicht nur aus der anfänglichen Steigung $f(x_n, y_n)$ bestimmt, sondern auch vom weiteren Steigungsverhalten der Funktion y abhängig gemacht wird. Dies wird beim Runge-Kutta-Verfahren vierter Ordnung dadurch realisiert, dass zunächst mit der Ableitung am Beginn des Intervalls ein Hilfsschritt zur Intervallmitte $x_n + h/2$ ausgeführt wird. An dieser Stützstelle und am Ende des Diskretisierungsintervalls werden drei weitere „Hilfssteigungen“ ermittelt. Der gesuchte Prognosewert ergibt sich aus geeigneter Mittelung aller vier Schätzwerte k_i

$$\begin{aligned}k_1 &= hf(x_n, y_n) \\k_2 &= hf(x_n + h/2, y_n + k_1/2) \\k_3 &= hf(x_n + h/2, y_n + k_2/2) \\k_4 &= hf(x_n + h, y_n + k_3) \\y_{n+1} &= y_n + 1/6(k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4) + \mathcal{O}(h^5) \quad .\end{aligned}\tag{26}$$

Die Koeffizienten der Schätzwerte werden dabei derart gewichtet, dass sich die Fehlerterme jeweils gleicher Ordnung eliminieren. Dadurch heben sich die Fehlerterme der Ordnung $\mathcal{O}(h^4)$ weg, so dass der lokale Fehler $\mathcal{O}(h^5)$ beträgt, auf Kosten von vier Funktionsauswertungen pro Integrationsschritt.

Das Runge-Kutta-Verfahren 4. Ordnung ist einem Verfahren der p -ten Ordnung dann überlegen, wenn ein mindestens $(4/p)$ mal so großer Integrationsschritt zur selben Genauigkeit führt. Dies ist in der Regel der Fall, da die zugrundeliegende Kepler'sche Fassregel für Kurven bis zum dritten Grad exakt ist, so dass ihr Verfahrensfehler bei $\mathcal{O}(h^4)$ liegt. Die Erfahrung hat gezeigt, dass ein Runge-Kutta-Verfahren vierter Ordnung einerseits genau ist und andererseits wenig Rechenaufwand erfordert. Bei sehr glatten Kurven können Verfahren höherer Ordnung ihren Vorteil jedoch nicht ausspielen, weshalb eine Anpassung der Schrittweite sinnvoll ist.

4.3.3.2 Dynamische Steuerung der Schrittweite Das besprochene Runge-Kutta-Verfahren beruht auf einer festen Schrittweite h , die, wie bereits gezeigt, die Güte der Lösung maßgeblich beeinflusst. Je kleiner der Schritt h , desto geringer ist die Abweichung der berechneten Phasenkoordinaten von den exakten Trajektorien eines fiktiven Systems (wobei allerdings Rundungsfehler eine untere Grenze vernünftiger h setzen). Andererseits kann mit einer groben Diskretisierung der numerische Aufwand, d.h. die Rechenzeit, erheblich reduziert werden.

Die Frage nach der optimalen Schrittweite kann daher nur in Bezug auf den

zulässigen Fehler beantwortet werden. Um die Rechenzeit bei einer vorgegebenen Genauigkeit zu begrenzen, ist ein Regelmechanismus notwendig, der an Stellen, wo die Funktionen glatt sind, die Schrittweite groß wählt und dort, wo die höheren Ableitungen große Werte annehmen, klein. D.h., die Schrittweite h ist jeweils so anzupassen, dass der lokale Fehler die gewünschte Genauigkeit gerade nicht überschreitet.

Übertragen auf MD-Simulationen mesoskopischer Systeme bedeutet dies, dass für den Fall, dass sich die Gradienten kaum verändern, auf eine häufige Auswertung der Kräfte verzichtet und die Bewegung der Teilchen in einem größeren Zeitraster aufgelöst werden kann. Vor allem bei Stößen wird es jedoch notwendig, den Zeitschritt zu verkleinern. Aus diesem Grunde verliert das Verfahren der variablen Schrittweite bei der Simulation makroskopischer Systeme seinen Vorteil, da infolge der hohen Teilchenzahl ständig Teilchenstöße stattfinden. Die optimale Schrittweite bleibt hier über den Verlauf einer Simulation im Wesentlichen konstant, so dass der numerische Mehraufwand nicht zweckmäßig und es daher sinnvoller ist, mit einem fixen Zeitschritt zu rechnen, der dann in Vorstudien zu ermitteln ist.

In dieser Arbeit wurde zur automatischen Schrittweitenanpassung das Runge-Kutta-Verfahren 5. Ordnung in Verbindung mit den Cash-Karp-Koeffizienten verwendet. Dieses wird auch als „eingebettetes Runge-Kutta-Verfahren“ bezeichnet, da man bei einer veränderten Gewichtung der Schätzwerte die Runge-Kutta-Methode 4. Ordnung erhält, so dass zur Abschätzung des (lokalen) Approximationsfehlers die Differenz zwischen den Abschätzungen in der 4. und 5. Ordnung verwendet werden kann. Der zusätzliche Rechenaufwand ist gering, da auf die bereits ermittelten Funktionswerte an den bekannten Stützstellen zurückgegriffen wird.

Bei der eigenen Implementierung wurde von dem in den NUMERICAL RECIPES vorgeschlagenen Algorithmus ausgegangen:

- Die Routine **rkck** („algorithm routine“) basiert auf der Cash-Karp Runge-Kutta-Verfahren 5. Ordnung; propagiert die Lösung über einen Integrations-schritt und berechnet die Abschätzung für den lokalen Fehler.
- Die Routine **rkqs** („stepper routine“) skaliert die Schrittweite so, dass der Fehler nur wenig unterhalb Genauigkeitsschranke bleibt. (Bei Überschreiten wird der Integrations-schritt mit verringerter Schrittweite wiederholt).
- Der Treiber **odeint** steuert die Integration über ein endliches Intervall.

4. Grundlagen: Molekulardynamik-Simulationen mesoskopischer Systeme

Für eine ausführliche Behandlung des eingebetteten Runge-Kutta-Verfahrens wird auf Referenz [20] verwiesen. Der Quellcode der MD-Simulation mit dem angepassten Integrator wird bei Interesse gerne zur Verfügung gestellt. Eine für das Fortgeschrittenen Praktikum überarbeitete (rudimentäre) Programmversion und eine Beschreibung des Programmaufbaus steht unter

<http://voyager.physik2.uni-rostock.de/plasmen/mich/D/welcomed.html>

zum Download bereit.

Gegenüber dem Runge-Kutta-Verfahren 4. Ordnung mit konstanter Schrittweite konnte die Rechenzeit in Abhängigkeit von den Anfangsbedingungen auf bis zu ein Hundertstel reduziert werden. Bei den Testläufen zeigte sich, dass das Verfahren mit adaptiver Schrittweitenkontrolle gerade bei der Simulation von Teilchenstößen seine Stärke ausspielen kann, da nur im kritischen Bereich mit einem feinen Zeitgitter gearbeitet werden muss und das gegenseitige „durchtunneln“ der Teilchen, aufgrund einer im Verhältnis zur Teilchengeschwindigkeit zu groß gewählten Schrittweite, ausgeschlossen werden kann.

Eine Schwierigkeit der automatischen Schrittweitenanpassung besteht darin, dass es nicht mehr in der Hand des Benutzers liegt, an welchen Stellen die rechte Seite $f(x, y)$ evaluiert wird, was u.a. bei der Mittelwertbildung einen Nachteil mit sich bringt: Die zu bestimmenden Größen gehen aus der Mittelung entlang der Trajektorie des betrachteten Systems hervor. Simuliert man über k Zeitschritte, so berechnet sich der Mittelwert einer Größe A gemäß

$$\langle A \rangle = \frac{1}{k} \sum_{i=1}^k A(q(ih), p(ih)) \quad .$$

Dabei bezeichnet h einen *festen* Zeitschritt. Im Grenzfall infinitesimal kleiner Zeitschritte $h \rightarrow 0$ und einer unendlich langen Beobachtungszeit konvergiert das Trajektorienmittel gegen das Zeitmittel. Eine adaptive Schrittweite führt bei der praktischen Umsetzung jedoch zu einer Vorauswahl (Selektion) der Mikrozustände und damit zu einer variablen Dichte der Messpunkte A_i auf der Trajektorie. Werden diese nun einfach gemittelt, so kann dieser Wert vom tatsächlichen Trajektorienmittel $\langle A \rangle$ abweichen.

Bei der Grundzustandsuntersuchung ist dies insofern unproblematisch, weil die Fluktuationen der Teilchen durch Abkühlung des Systems beliebig eingeschränkt werden können, so dass sich eine Mittelwertbildung erübrigt. Sollen dynamische Eigenschaften untersucht werden, ist es notwendig, die obigen Anführungen zu berücksichtigen. Es bietet sich beispielsweise an, während der Mittelwertbildung auf eine

4.4 DAVI - Ein interaktives MD-Visualisierungs-Programm

festen Schrittweite umzuschalten oder besser, die Messwerte entsprechend ihrer Dichte (Abstand zum nächsten Nachbarn) unterschiedlich zu gewichten.

4.3.4 Numerische Fehler

Neben der Frage, inwieweit das vom Computer gelöste Problem mit dem ursprünglichen Problem übereinstimmt, ist auch die Frage nach dem numerischen Fehler zu beantworten.

Rundungsfehler können prinzipiell nicht vermieden werden, da reelle Zahlen in den Gleitkomma-Formaten des Rechners nicht ungerundet verarbeitet werden können. Bei der Implementierung des MD-Codes stellte es sich als notwendig heraus, mit doppelter Präzision, d.h. mit dem Datentyp `double` (64 Bit), zu rechnen, da sich ansonsten die Rundungsfehler zu ersichtlich unsinnigen Rechenergebnissen fortpflanzen. Insbesondere bei der Berechnung periodischer Abläufe mit kleiner Schrittweite, d.h. vielen Rechenschritten, entstand der Eindruck eines chaotischen Verhaltens, obwohl dieses in der Realität gar nicht vorlag. Wurde die Rechengenauigkeit erhöht, waren die Rundungsfehler gegenüber dem Diskretisierungsfehler (siehe Abschnitt 4.3.3) vernachlässigbar.

Im Hinblick auf die Ljapunow-Instabilität¹⁴ wird bei der Integration der Bewegungsgleichungen, ausgehend von den Anfangsbedingungen, das System den Phasenraum auf einer Trajektorie durchlaufen, die von der Rechengenauigkeit (resp. Verfahrensfehler) abhängt. Das Überspringen auf benachbarte Trajektorien kann dann als irrelevant betrachtet werden, wenn das System den durch die Spezifikation des Ensembles definierten Bereich des Phasenraums nicht verlässt. Dies bedeutet im konkreten Fall des mikrokanonischen Ensembles, dass die Erhaltung der Gesamtenergie gewährleistet sein muss. Insofern stellt die Überwachung der Energieerhaltung einen guten Indikator für den globalen Fehler und damit für den korrekten Ablauf der MD-Simulation dar.

4.4 DAVI - Ein interaktives MD-Visualisierungs-Programm

Ein wichtiger Aspekt der Molekulardynamik ist die visuelle Aufbereitung der Daten, da die berechnete Datenflut ohne graphische Werkzeuge nicht sinnvoll auswertbar und somit keiner vernünftigen, bzw. effizienten Interpretation zugänglich ist.

¹⁴Zeitlich exponentielle Divergenz benachbarter Trajektorien.

4. Grundlagen: Molekulardynamik-Simulationen mesoskopischer Systeme

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurde ein Programm zur komfortablen Visualisierung der Molekulardynamik entwickelt. Die Programmidee entsprang der Notwendigkeit, die bei den MD-Simulationen anfallenden Daten auf geeignete Weise visuell darzustellen¹⁵. Mit gewöhnlichen Graphik-Programmen können zwar 3D-Plots der Teilchenanordnung für einen beliebigen Simulationszeitpunkt erzeugt werden, allerdings ist es nicht möglich, die dynamische Entwicklung des Systems zu erfassen, d.h. die Bewegung der Teilchen wie „einen Film“ ablaufen zu lassen.

Mit DAVI liegt nun ein Programm vor, mit dem die bei der MD-Simulation errechneten Daten per Tastendruck - sowohl parallel zur Simulation als auch im Nachhinein - animiert und die graphische Bildschirmausgabe interaktiv gesteuert werden kann, so dass es möglich ist, durch die Visualisierung der Bewegungsabläufe zu einem besseren Verständnis der zugrundeliegenden physikalischen Vorgänge zu gelangen.

DAVI wurde in dieser Arbeit zum einen dazu genutzt, die Funktionsweise der MD-Simulation zu überwachen und sowohl Eingabe- als auch Programmfehler schnell ausfindig zu machen und beheben zu können. Vor allem aber ermöglichte DAVI es, eine sehr große Anzahl verschiedener Grundzustands- und metastabiler Konfigurationen der Elektron-Loch-Cluster in Abhängigkeit von physikalischen Parametern wie Teilchenzahl N , Schichtabstand d oder Stärke des Wechselwirkungspotentials α zu untersuchen. Weitere Einzelheiten der Anwendung des Programms sind in Abschnitt 5.1.5 gegeben.

4.4.1 Implementierung

Bei der Entwicklung von DAVI wurde Wert darauf gelegt, das Programm auch anderen Anwendern zugänglich zu machen. Insofern standen eine einfache Bedienbarkeit und eine klar definierte Schnittstelle im Vordergrund. Ein Grundgedanke war daher die Trennung von Generierung und Visualisierung der Daten, und den Datenaustausch über eine Datei zu realisieren. Dies bringt zum einen den Vorteil, dass es unabhängig von der MD-Simulation möglich ist die Daten wiederzugeben („abzuspielen“) und zum anderen, dass dadurch eine einfache Fehlerbehandlung gewährleistet wird, da die Schnittstelle (die Datei) leicht eingesehen werden kann.

4.4.1.1 Programmiersprache DAVI wurde in der freien Script-Sprache Tcl mit der Tk-Erweiterung (einem Toolkit zur Programmierung von GUI-Applikationen)

¹⁵Daher die Namensgebung **D**aten **V**isualisierungs-Toolkit, kurz DAVI.

4.4 DAVI - Ein interaktives MD-Visualisierungs-Programm

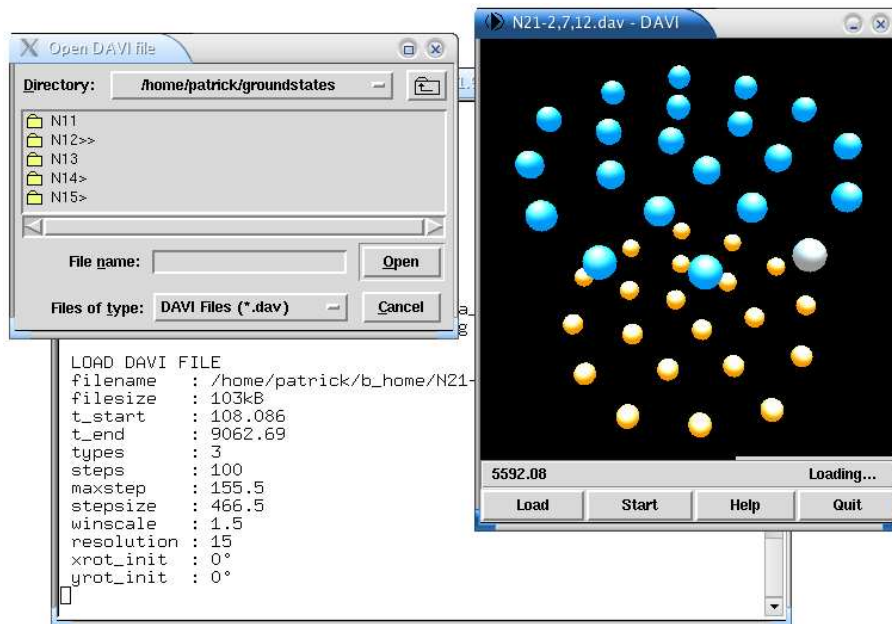


Abb. 4.9: Screenshot des MD-Visualisierungs-Programms DAVI. Zu sehen sind graphisches und textbasiertes Benutzer-Interface sowie das Dialogfeld zum Öffnen einer DAVI-Datei. Die elementaren Funktionen (Load, Start/Stop, Help, Quit) sind über Buttons erreichbar. Die interaktive Steuerung wird über die Tastatur vorgenommen. Im Hauptfenster ist die Grundzustandskonfiguration des Elektron-Loch-Clusters ($N_x = 21$) zu erkennen. An dieses Fenster grenzt unten die Fortschrittsanzeige. Darunter befindet sich die Statusleiste, die links den aktuellen Zeitschritt und rechts die ausgeführte Aktion (Laden einer neuen Datei) angibt.

unter Linux entwickelt. Eine Interpretersprache ermöglicht eine schnelle Entwicklung, da der Compiler-Zyklus umgangen werden kann. Außerdem spricht für eine Interpretersprache, dass ein Skript auch für Dritte einfach zu lesen und modifizieren ist.

4.4.1.2 3D-Graphikbibliothek Als 3D-Bibliothek wurde OpenGL eingesetzt, um eine leistungsfähige 3D-Graphik zu ermöglichen. Da Tk nativ keine OpenGL-Unterstützung mitbringt, wurde der Tcl/Tk-Wrapper *tom* verwendet.

4.4.1.3 Spezifikation des Dateiformats Der erforderliche Input ist lediglich eine Datei, die für jeden Zeitschritt einen Datensatz mit den x -, y - und z -Koordinaten

4. Grundlagen: Molekulardynamik-Simulationen mesoskopischer Systeme

aller darzustellenden Teilchen (Atome, Ionen, Elektronen, etc.) enthält. DAVI liest die Daten aus und stellt die Objekte für jeden Zeitschritt als ein Bild (Frame) dar.

Außerdem wird den Teilchen individuell oder zu Gruppen zusammengefasst eine Farbe und eine Größe zugewiesen, so dass eine einfache Unterscheidbarkeit verschiedener Arten von Teilchen gewährleistet ist. Zusätzlich kann für jeden Zeitschritt noch ein Kommentar (String) gespeichert werden, der bei der Wiedergabe in der Statusleiste (siehe Abb. 4.9) ausgegeben wird. Dies ist nützlich, um die Entwicklung physikalischer Größen kontrollieren zu können.

Wesentliche Merkmale des spezifizierten Dateiformates sind:

- Die Darstellung (Blickwinkel, Hervorhebung einzelner Teilchen, ...) ist im Gegensatz zu einem typischen Videoformat (MPEG, AVI, Quicktime, etc.) nicht a priori festgelegt, sondern kann zur Laufzeit des Programms verändert werden.
- Die Koordinaten stehen weiterhin als ASCII Text zur Verfügung. (Es erwies sich als sehr nützlich, dass graphische Darstellung und Koordinaten der Teilchen direkt zugeordnet werden können.)
- Die Dateien sind von geringer Größe (etwa 1 MB/min), da die Bildinformation auf die Teilchenkoordinaten reduziert wird.
- Die Dateigröße kann durch eine in DAVI integrierte bzip2-Kompression weiter um den Faktor 4 reduziert werden.

Das entwickelte Dateiformat *.dav ist somit auch zur Archivierung der Simulationsdaten (Trajektorien) geeignet.

4.4.2 Programmeigenschaften

Die Interaktivität erlaubt dem Benutzer die Visualisierung während der Wiedergabe flexibel an die Bedürfnisse anzupassen. Die wichtigsten Programmeigenschaften sollen hier nur kurz zusammengefasst werden:

- Das Modellsystem kann räumlich gedreht und die Größe des dargestellten Bereiches vergrößert und verkleinert werden.
- Die Wiedergabegeschwindigkeit und Richtung („vorwärts“, „rückwärts“) ist frei wählbar. Auch Einzelschritt, Schnellvor- und Rücklauf sind verfügbar.
- Die perspektivische Darstellung und 3D-Beleuchtungseffekte erzeugen räumliche Tiefe.

4.4 DAVI - Ein interaktives MD-Visualisierungs-Programm

- Intuitive Bedienung über das GUI und Tastatur. Es wurde darauf geachtet, dass die Tastenbelegung einprägsam ist (z.B. Rotation des Systems mit den Pfeiltasten).
- Ein Export der Graphiken ist möglich, so dass leicht gif-Animationen, MPEG-Videos u.a. erstellt werden können. (Beispielsweise um die Animation ins Internet zu stellen.)
- DAVI ist mit der Skriptsprache Tcl einfach erweiterbar, sogar C/C++ Routinen können eingebunden werden.
- Einfache Installation, da kein Kompilieren notwendig ist.

Darüber hinaus wurde bei der Umsetzung auf eine benutzerfreundliche Fehlerbehandlung, z.B. bei einer unzulässig formatierten Datei, geachtet. DAVI wird im Internet mit Installations- und Bedienungsanleitung unter

<http://voyager.physik2.uni-rostock.de/plasmen/mich/D/davi.html>

zur Verfügung gestellt.

4. Grundlagen: Molekulardynamik-Simulationen mesoskopischer Systeme

5 Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d

Auf dem in Kapitel 3 eingeführten Modell aufbauend, werden in diesem Kapitel die Ergebnisse vorgestellt, die aus den MD-Simulationen hervorgingen.

Untersucht werden die Grundzustände symmetrischer Elektron-Loch-Bilayer, die aus $N_x = 1 \dots 30$ Elektronen und Löchern bestehen. Zielstellung ist es, die Frage zu beantworten, ob es Cluster gibt, deren Grundzustandskonfiguration vom Schichtabstand d abhängig ist, und zu analysieren, wodurch diese Strukturübergänge hervorgerufen werden. Die Problematik bei der Grundzustandsbestimmung liegt in der Vielzahl energetisch eng beieinander liegender Zustände. Um gesicherte Aussagen über den Grundzustand treffen zu können, ist es daher notwendig, jeden dieser Zustände über die gesamte Breite des Schichtabstandes d zu untersuchen. Neben dem numerischen Problem liegt eine weitere Schwierigkeit in der effizienten Auswertung der gewonnenen Daten. Erst durch das Programm DAVI kann die Auswertung des Konfigurationsraumes erheblich vereinfacht, bzw. in diesem Umfang erst möglich gemacht werden.

Des Weiteren wird ein Einschichtmodell mit variablem Wechselwirkungspotential herangezogen, um zu klären, welchen Einfluss die Stärke der Teilchenkorrelationen auf den Grundzustand hat.

5.1 Praktische Umsetzung der MD-Simulation

Die numerische Berechnung der klassischen Grundzustandskonfigurationen erfolgt, wie in Kapitel 4 dargestellt, unter Anwendung von MD-Simulationen. Der Programmablauf gliedert sich dabei wie folgt:

1. Einlesen der Parameter, die den Ablauf der Simulation spezifizieren und Initialisierung des Systems.
2. Berechnung der auf jedes Teilchen wirkenden Kräfte.
3. Zeitliche Propagation der Bewegungsgleichungen (Integration).
4. Berechnung der relevanten Systemgrößen und Test auf Abbruchbedingungen (ggf. Tempern des Systems oder Änderung des Schichtabstandes d).

5. Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d

5. Auswertung des Simulationslaufes.

In der Hauptschleife der MD-Simulation erfolgt die Iteration über die Punkte 2, 3 und 4 bis zum Erreichen des Abbruchkriteriums.

Auf die einzelnen Schritte und die Durchführung der Simulation soll nun eingegangen werden.

5.1.1 Initialisierung

Zu Beginn jedes Simulationslaufes werden durch den Benutzer die Programmparameter festgelegt. Es stehen dabei folgende Eingabegrößen zur Verfügung¹⁶:

- Anzahl der Elektron-Loch-Paare N_x
- Geschwindigkeitsbetrag der Teilchen bei Initialisierung v_{init}
- Relativer Diskretisierungsfehler q
- Temperaturskalierungsfaktor k
- Periode der Abfolge der einzelnen Abkühlschritte T_{cool}
- Untere Grenze für kin. Energie E_{kin}^{min} (Abbruchkriterium des Abkühlvorgangs)
- Startwert des Schichtabstandes d_{from} ($d_{from} > d_{to}$)
- Endwert der Schichtabstandes d_{to}
- Inkrementierung des Schichtabstandes d_{incr}
- Anzahl der Abkühlvorgänge N_{eval} pro eingestellten Schichtabstand d
- Weitere Programmoptionen (Name der Rechnung, maximale Laufzeit, etc.)

Des Weiteren steht dem Anwender offen, ob die Anfangskoordinaten der Teilchen aus einer Datei geladen oder per Zufallsgenerator bestimmt werden sollen. Auch kann er sich für die Option entscheiden, eine abgebrochene Rechnung mit veränderten Parametern fortzusetzen.

¹⁶Damit nicht für jeden Simulationslauf alle Werte neu eingegeben werden müssen, „erinnert“ sich das Programm und gibt Werte vor, so dass i. d. R. nur einzelne Parameter neu gesetzt werden müssen.

5.1 Praktische Umsetzung der MD-Simulation

Zur Erklärung der Parameter: Das Programm durchläuft mehrere Schleifen. Zunächst einmal wird das System, bestehend aus N_x Elektron-Loch-Paaren, für jedes eingestellte d N_{eval} mal abgekühlt. Die Skalierung aller Geschwindigkeitskomponenten mit dem Faktor $k < 1$ wird bei jedem dieser Abkühlvorgängen mit der Periode T_{cool} solange fortgesetzt, bis die kinetische Energie des Systems den Grenzwert E_{kin}^{min} unterschreitet. Der aus den wiederholten Abkühlvorgänge hervorgehende Zustand mit der niedrigsten potentiellen Energie ist ein für das jeweilige d möglicher Grundzustand. Darüber hinaus wird mit d_{incr} über das Intervall $[d_{from}, d_{to}]$ gesampelt. Mit Hilfe des Parameter q kann der Diskretisierungsfehler, bzw. die Rechengenauigkeit gesteuert werden (s. Abschnitt 4.3.3.2 und Ref. [20]).

5.1.2 Berechnung der Kräfte

Die numerische Hauptlast bei der Durchführung einer Molekulardynamik-Simulation liegt, wie bereits in Punkt 4.3.2 angesprochen, bei der Berechnung der Kräfte zwischen den einzelnen Teilchen, da für die Berücksichtigung aller paarweisen Coulomb-Wechselwirkungen $N(N - 1)/2$ Rechenschritte notwendig sind, d.h. die Rechenzeit mit $\mathcal{O}(N^2)$ skaliert.

5.1.3 Integration

Der vorherige Schritt, die Berechnung der Kräfte und die Integration der Bewegungsgleichungen stellen den Kern einer MD-Simulation dar. Um den numerischen Aufwand von vornherein zu begrenzen, ist es daher angebracht den pragmatischen Ansatz der Laufzeitoptimierung dieses besonders häufig ausgeführten Codesegementes zu verfolgen.

In diesem Sinne war es im vorliegenden Fall, aufgrund der vom Schichtabstand d abhängigen Stärke der Teilchenkorrelationen, vorteilhaft ein Integrationsverfahren zu verwenden, welches die Vorgabe der relativen lokalen Genauigkeit q ermöglicht und die Schrittweite h an die gewählte Fehlergrenze dynamisch anpasst, so dass mit dem für jeden Schichtabstand optimalen Zeitschritt gerechnet wird.

Eine weitere deutliche Verbesserung der Programmlaufzeit konnte u.a. durch Setzen geeigneter Compiler-Flags erzielt werden. Dadurch ist es möglich, Code-Optimierungen (wie z.B. das Entrollen von Schleifen zur Vermeidung zeitaufwändiger Sprünge, jedoch zulasten der Größe des Programmcodes) und die Feinabstimmung

5. Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d

des Compilers auf die eingesetzte Hardware (Speicher, CPU, ...) vorzunehmen¹⁷. Überdies lässt sich die Performance des Codes steigern, indem spezielle Datenstrukturen, wie z.B. `valarray`, der C++ Klassenbibliothek verwendet werden, die als Lowlevel-Bausteine für hochperformante numerische Berechnungen entworfen wurden [42], jedoch in der Fachliteratur leider „stiefmütterlich“ behandelt werden.

Durch manuelle Optimierungen konnte die Effizienz weiter gesteigert werden, indem beispielsweise Variablen in der sehr häufig aufgerufenen „algorithm routine“ des Integrators (s. Abschnitt 4.3.3.2) als *statisch*, bzw. Variablen, auf die innerhalb einer Funktion besonders häufig zugegriffen wird, mit dem Speicherklassenspezifizierer *register* deklariert wurden.

Bei allen Optimierungen ist eine Kontrolle der Einstellung, auch bezüglich unvorhersehbarer Seiteneffekte, unverzichtbar. Zum Zweck der Laufzeitüberprüfung, d.h. des sog. Profilings, wurde eine Klasse geschrieben, mit der die System- (System Time), Prozess- (User Time) sowie reale Laufzeit (Real Time) im Zeitfenster von $10^{-6}s$ bis zu etlichen Tagen einfach bestimmt werden kann und damit die Laufzeit einzelner Programmteile in Abhängigkeit von den Eingabewerten (Teilchenzahl N , lokaler Fehler q , etc.) optimiert werden konnte. Es ist dabei deutlich geworden, dass Experimente für die nichttriviale Entwicklung von Software unabdingbar sind.

5.1.4 Temperierung

Will man in eine MD-Simulation eine künstliche Abkühlung (Simulated Annealing) implementieren, so hat man über die kinetische Energie einen direkten Zugang zur Temperatur (siehe hierzu Abschnitt 4.3.1). Durch Einführung eines zusätzlichen Koeffizienten k kann die Temperaturentwicklung des Systems gesteuert werden, indem in regelmäßigen Abständen T_{cool} die Teilchengeschwindigkeiten mit dem Parameter k skaliert werden. Dadurch lässt sich eine zur momentanen Systemtemperatur proportionale Energieabführung realisieren ($k < 1$).

5.1.5 Durchführung

Um die Simulation zu starten, müssen allen Teilchen Ausgangspositionen und Geschwindigkeiten zugewiesen werden. Zur Gewinnung eines Überblicks über mögliche Grundzustandskonfigurationen wird zunächst von einer ungeordneten Verteilung der Teilchen ausgegangen, d.h. in jeder Schicht werden die Elektronen und Löcher

¹⁷Die konkreten Compiler-Einstellungen können dem Makefile des MD-Programms entnommen werden.

5.1 Praktische Umsetzung der MD-Simulation

zufällig in einen Kreis mit dem Radius R eingesetzt. Die so erzeugte (instabile) Clusterkonfiguration besitzt im Allgemeinen eine hohe potentielle Energie, deren Umsetzung in Bewegung eine starke Aufheizung des Systems bewirkt. Dies ermöglicht es den Partikeln, die Potentialbarrieren zu überwinden und einen sehr großen Teil der Potentialenergiefläche zu erreichen. Beim anschließenden Abkühlungsprozess wird dem System schrittweise die kinetische Energie entzogen. Die Rechnungen zeigen, dass sich die Elektronen und Löcher aus dem ungeordneten, quasi flüssigen Stadium heraus paarweise vertikal übereinander anordnen und dann selbstorganisierend in einem Zustand niedriger Energie in konzentrischen Schalen positionieren, wobei durch Annäherung an eine stabile Konfiguration jeweils Wärme aus dem Reservoir der Bindungsenergie nachgeliefert wird.

Ob sich das System für den Grundzustand oder einen der metastabilen Zustände „entscheidet“, ist a priori nicht abzusehen. Bei einer langsamen Abkühlung behält das System stets ausreichend kinetische Energie, um die Potentialbarrieren zu überwinden und sucht im Regelfall den Zustand niedrigster Energie auf. Wird das System hingegen zu schnell abgekühlt, führt dies analog zur Steepest Descent Methode lediglich zum Auffinden des nächst gelegenen lokalen Minimums, da das System, insbesondere bei abruptem, vollständigem Entzug der kinetischen Energie, nur in Richtung $-\nabla U$ beschleunigt wird und folglich lokalen Minima nicht entkommen kann.

Wird der Schichtabstand d in kleinen Schritten $d_{incr} = 0.01$ inkrementiert und der Abkühlvorgang für jedes d $N_{eval} = 200$ Mal wiederholt, kann aufgrund des Boltzmann-Kriteriums in Gleichung (15) bei langsamer Abkühlung mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit davon ausgegangen werden, dass die, bzw. jede der möglicherweise verschiedenen Grundzustandskonfigurationen des Systems (in Bezug auf d), zumindest für einen der Schichtabstände d gefunden wurde.

Mit der Kenntnis der energetisch günstigen Konfigurationen wird fortgefahren und in weiteren Simulationsläufen alle energetisch dichten Konfigurationen separat über den gesamten Bereich der d -Werte untersucht. Dazu werden die Teilchen bei weiteren Läufen auf die zuvor ermittelten Konfigurationen initialisiert und die Energie dieser Teilchenkonfiguration in Abhängigkeit vom Schichtabstand d bestimmt, indem der Schichtabstand d wieder von d_{from} bis d_{to} durchgefahren wird. Die Teilchenpositionen werden bei Änderung des Schichtabstandes aber dieses Mal nicht, wie oben beschrieben, neu gesetzt, sondern das System für jedes eingestellte d etwas erhitzt, indem die Geschwindigkeiten der Partikel mit zufälligen Werten neu initialisiert werden. Darauf wird das System wieder abgekühlt ($N_{eval} = 1$).

5. Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d

Die Anregung der Teilchen muss dabei jedoch so gewählt werden, dass ihre kinetische Energie nicht ausreicht, um die Potentialbarriere zu einer anderen Schalenbesetzung überwinden zu können. Dabei stellt sich das Problem, dass die Energieschwellen zwischen den verschiedenen Konfigurationen auch von d abhängig sind und die Cluster während der Simulation häufig ihre ursprüngliche Konfiguration verlassen.

Auf den Anregungsprozess kann hingegen nicht verzichtet werden, bzw. die Anregungsenergie beliebig verringert, da sich gerade bei einer kleinen Änderung des Schichtabstandes d die Gleichgewichtspositionen der Partikel kaum verändern und die Teilchen aufgrund des flachen effektiven Potentials nur sehr gering beschleunigen. Die Kühlung führt des Weiteren dazu, dass die Teilchen einfrieren, ohne ihre Position zu verändern, d.h. der Schwellwert E_{kin}^{min} unterschritten wird, ohne dass die Teilchen die Gleichgewichtslage für den neu eingestellten Schichtabstand aufgesucht haben. Dieses außerordentlich komplexe Optimierungsproblem erwies sich als sehr schwierig zu automatisieren, zumal sich die Bedingungen mit Änderung von d , bzw. der Teilchenzahl stark ändern.

Eine effiziente Lösung dieses Problems wurde dadurch gefunden, während der Simulation komfortabel mit DAVI zu überprüfen, ob der Cluster die eingestellte Schalenbesetzung beibehalten hat und zu kontrollieren, ob sich die Energie zwischen zwei oder mehreren aufeinanderfolgenden Schritten nicht oder nur sehr geringfügig ändert, d.h., ob das System eingefroren ist. Letzteres lässt sich visuell einfach dadurch feststellen, dass die Teilchen bei Verringerung des Schichtabstandes auf ihren vorherigen Positionen „sitzen“ bleiben. Bei ungünstigem Verlauf wird die Simulation abgebrochen und eine neue Rechnung mit ggf. geänderten Parametern gestartet. Springt das System auf eine andere Konfiguration über, steht als einzige praktikable Option nur zur Verfügung, die Anregungsenergie zu verkleinern. Im anderen Fall, dass die Teilchen „stecken bleiben“, gilt es, die Anregungsenergie und das Inkrement des Schichtabstandes d_{incr} zu erhöhen. Letzteres darf aber auch nur in einem begrenzten Bereich variiert werden, da ein zu großes Inkrement d_{incr} dazu führt, dass die Teilchen aufgrund eines großen Potentialgefälles $-\nabla U$ zu stark beschleunigen und ausreichend kinetische Energie besitzen, um in eine andere Konfiguration zu wechseln. Eine weitere Option ist es, den Abkühlungsprozess über die Parameter T_{cool} , k und E_{kin}^{min} so weit zu verlangsamen, dass den Teilchen auch bei geringer Geschwindigkeit ausreichend Zeit bleibt, um sich in die Gleichgewichtsposition zu bewegen. Der Nachteil liegt dabei aber in der proportional verlängerten Simulationszeit.

Für die systematische Untersuchung des Konfigurationsraumes des betrachteten

5.1 Praktische Umsetzung der MD-Simulation

Bilayer-Systems mit bis zu je 30 Elektronen und Löchern in Abhängigkeit vom Schichtabstand d wurde ausgiebig vom Linux-Cluster „Fermion“ der Universität Rostock Gebrauch gemacht. Durch den Einsatz des Rechenclusters konnten verschiedene Ensembles simultan auf verschiedenen Prozessoren berechnet und die kleineren Cluster in der Zeit ausgewertet werden, in der die Rechnungen der Cluster mit einer größeren Anzahl von Teilchen noch liefen. Da die Dauer eines Simulationslaufes infolge der vieltausendmaligen, sehr langsamen Abkühlung des Systems bei bis zu vier Tagen lag und mehrere Reihen von Rechnungen mit verschiedenen Parametern durchgeführt wurden, summierte sich die Zeitersparnis bei der Durchführung der Simulationen auf einige Wochen.

5.1.6 Auswertung

Zur Kontrolle des Simulationslaufes werden nach jeder Rechnung die Rechenzeit, die Anzahl der Integrationsschritte und Häufigkeit der ungültigen Schritte, die wiederholt werden mussten, weil der zulässige lokale Fehler überschritten wurde, ausgegeben. Daneben bietet das Programm durch eine *gnuplot*-Anbindung die Möglichkeit, aus dem Programmmenü heraus die Entwicklung der verschiedenen Energiebeiträge, der Drehimpulse, des mittleren Teilchenabstandes und die Trajektorien graphisch darzustellen. Auf diese Weise kann der Ablauf der Simulation (speziell des Abkühlprozesses) leicht überblickt und ausgewertet werden. Es zeigte sich, dass der Algorithmus eine gute Stabilität, insbesondere gegen Drift der Energie aufweist.

Bei der Bestimmung der Grundzustände liegt die wesentliche Information jedoch nicht in den genauen Verläufen der Trajektorien, sondern in den Fixpunkten, in die das System läuft. Insofern waren die Erhaltungssätze (Energie) nicht kritisch. Da lediglich sichergestellt werden muss, dass das Verfahren konvergiert, kann ein großer Diskretisierungsfehler q gewählt und damit die Laufzeit des Programms drastisch verringert werden. Die Konvergenz wird vor allem durch die Wahl der Parameter q und E_{kin}^{min} bestimmt. Wird q zu groß oder E_{kin}^{min} zu klein gewählt, führt dies aufgrund der groben Diskretisierung der Trajektorien dazu, dass die Teilchen sich dem Fixpunkt nicht ausreichend annähern können und das Programm in eine Endlosschleife läuft. D.h., ein für q zu groß gewählter Wert führt nicht dazu, dass „falscher“ Output ausgegeben wird! Die ausgegebenen Resultate waren stets (auch mit einer höheren numerischen Präzision) reproduzierbar.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass der Wahl des Abkühlplans und der Schrittweite eine entscheidende Rolle bei der effizienten Bestimmung des Grund-

5. Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d

zustandes zukommt. Aufgrund der Komplexität des Problems sind allgemeine Aussagen über die Konvergenzgeschwindigkeit jedoch nur schwer zu treffen und von den genauen Simulationsbedingungen abhängig.

5.2 Simulationsergebnisse

Nachdem ein Einblick in die numerische Umsetzung und die praktische Durchführung der Simulation gegeben wurde, wenden wir uns nun den Resultaten zu. Um die Grundzustandskonfigurationen in Abhängigkeit von d für viele verschiedene Cluster einfach zu erfassen, wurden für jede Teilchenzahl bis $N_x = 30$ die Differenzen der Gesamtenergien $\Delta E(d)$ aller relevanten Konfigurationen als Funktion von d geplottet. Als Bezugsenergie diente dabei jeweils die Energie $E(d)$ der Grundzustandskonfiguration des Einschicht-Coulombsystems.

5.2.1 Strukturübergänge

Aus der Analyse der Grundzustandskonfigurationen aller Teilchenzahlen bis einschließlich $N_x = 30$ über den gesamten Bereich von d geht hervor, dass einige Cluster in unterschiedlichen Bereichen von d andere Grundzustandskonfigurationen besitzen, d.h. ein Strukturübergang stattfindet, der durch eine veränderte Schalenbesetzung des Grundzustandes gekennzeichnet ist. Es wurden die folgenden drei unterschiedlichen Szenarios gefunden:

1. Die Grundzustandskonfiguration ist nicht von d abhängig.
2. Die beiden Grenzfälle unabhängiger Schichten ($\delta \gg 1$) und stark gekoppelter Schichten ($\delta \ll 1$) haben unterschiedliche Konfigurationen, die durch eine unterschiedliche Anzahl von Teilchen auf den Schalen charakterisiert sind.
3. Im Limes großer und kleiner Schichtabstände existieren die gleichen Konfigurationen, aber im Übergangsbereich zwischen diesen beiden Grenzfällen wird eine andere Grundzustandskonfiguration beobachtet.

Die Abbildungen 5.10 und 5.11 veranschaulichen die Fälle 2 und 3 beispielgebend an den Clustern mit $N_x = 10$ und $N_x = 12$ Elektron-Loch-Paaren. Für $N_x = 10$ findet nur ein Übergang im Bereich nahe $d = 1$ statt (siehe Tabelle 5.3). An diesem Punkt wechselt der Grundzustand (2,8), der von dem Einschicht-Coulomb-Cluster bekannt ist (s. Tab. 2.1), in die (3,7)er Konfiguration, welche auch in einem

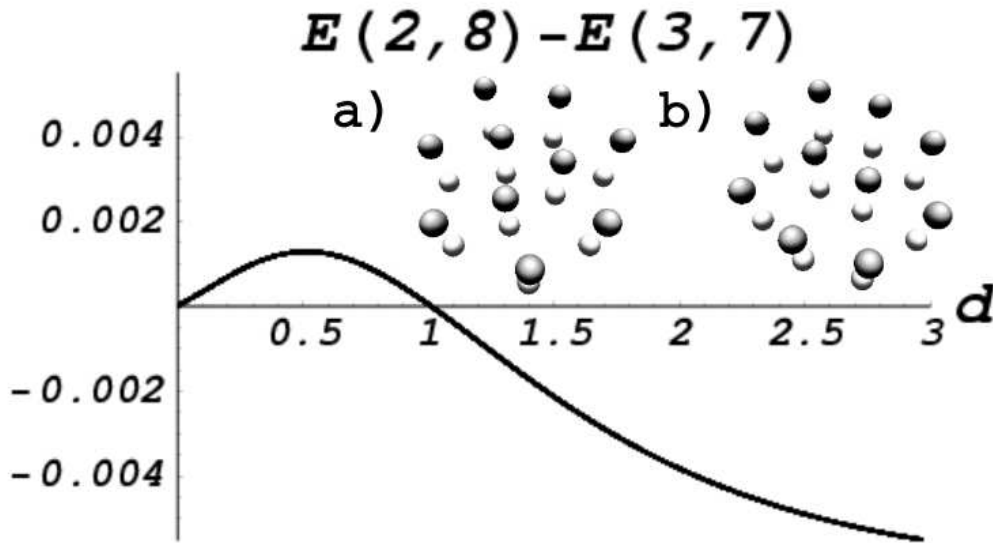


Abb. 5.10: Energiedifferenz zwischen den beiden energetisch niedrigsten Schalenkonfigurationen für $N_x = 10$ Elektron-Loch-Paare. Bei kleinem d hat der Grundzustand die Schalenkonfiguration (3,7), um $d/r_0 = 1$ wechselt die Anordnung der Teilchen im Grundzustand in die (2,8)er Konfiguration. Die eingefügten Graphiken zeigen die Grundzustandskonfiguration bei $d = 1,00$ (a) und $d = 1,02$ (b). Die extremalen Energiedifferenzen liegen bei $d = 0,51$ mit $\Delta E = 1,29 \cdot 10^{-3}$ und im Grenzfall $d \rightarrow \infty$ mit $\Delta E = -6,44 \cdot 10^{-3}$ vor. (Die Graphiken wurden mit DAVI erstellt, s. Abschnitt 4.9)

Einschicht-Cluster mit Dipol-Dipol-Wechselwirkung gefunden wurde [14]. Im Limes $d \rightarrow 0$ verschwindet die Energie beider Konfigurationen, aber das Verhältnis der Energien bleibt größer als eins, $E(2,8)/E(3,7) \rightarrow 1,0004$, d.h., die Konfiguration (3,7) bleibt stabil (siehe auch Abb. 5.10). Die Beobachtung für $N_x = 12$ ist anders: Hier liegt Fall 3 vor, d.h., bei kleinen d kehrt die Konfiguration (3,9) wieder, die auch bei großen d auftritt, während in einem Zwischenintervall der d -Werte die Anordnung (4,8) stabiler ist.

Die physikalische Erklärung für das beobachtete Verhalten lautet wie folgt: Ein besonderes Merkmal des vorliegenden System besteht darin, dass durch Variation des Schichtabstandes d die in-layer Wechselwirkung von Coulomb-Abstoßung, für

5. Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d

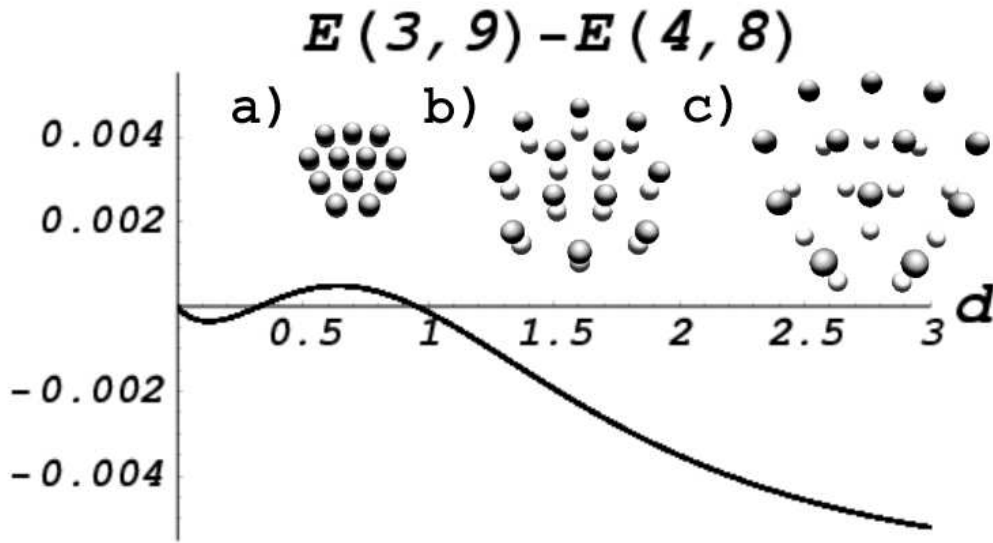


Abb. 5.11: Energiedifferenz zwischen den beiden energetisch niedrigsten Schalenkonfigurationen für $N_x = 12$ Elektron-Loch-Paare. Bei kleinen und großen d ist der Grundzustand durch die Konfiguration (3,9) gegeben, wohingegen in einem Übergangsbereich von $d = 0,3253$ bis $d = 0,9528$ die Konfiguration (4,8) energetisch optimal ist. Ebenfalls dargestellt ist die geometrische Anordnung des Clusters im Grundzustand für a) $d = 0,12$ ($\Delta E = -3,51 \cdot 10^{-4}$), b) $d = 0,64$ ($\Delta E = 4,84 \cdot 10^{-4}$) und c) $d = 1,50$ (im Limes $d \rightarrow \infty$ ist $\Delta E = -6,20 \cdot 10^{-3}$).

$d/a \gg 1$, zur Dipolabstoßung, für $d/a \ll 1$, übergeht. Die Konfiguration, die wir bei großen d vorfinden, ist offensichtlich die eines Einschicht-Coulomb-Clusters. Demgegenüber wird durch Verkleinerung von d die Korrelationsenergie rein dipolartig und verschwindet mit d wie $U_{corr}(d) \sim d^{4/5}$, siehe Gl. (13). Dadurch wird die gesamte potentielle Energie durch die Energie der Teilchen im äußeren Feld U_{conf} dominiert und damit die Grundzustandskonfiguration durch Minimierung von U_{conf} bestimmt (siehe auch Abb. 5.16). Bei endlichem d favorisiert das externe Feld Konfigurationen mit einer großen Teilchenzahl im Zentrum (innere Schale), wie in den Abbildungen 5.10 und 5.11 deutlich wird. Ferner zeigen die asymptotischen Konfigurationen für $d \rightarrow 0$ die Tendenz zur dicht gepackten (harter Kugeln ähnlichen) hexagonalen Struktur, vgl. Abb. 5.11 Inset a), die mit der einer Schicht aus N Di-

N_x	d_{cr}	Änderung der Schalenbesetzung	E
10	1,0116	$(2, 8)^* \rightarrow (3, 7)$	3,9167
12	0,9528	$(3, 9)^* \rightarrow (4, 8)$	4,3463
	0,3253	$(4, 8) \rightarrow (3, 9)^*$	2,1293
19	2,182	$(1, 6, 12)^* \rightarrow (1, 7, 11)$	9,1882
	0,417	$(1, 7, 11) \rightarrow (1, 6, 12)^*$	3,5697
21	3,429	$(1, 7, 13) \rightarrow (2, 7, 12)$	11,6283
23	2,436	$(2, 8, 13) \rightarrow (3, 8, 12)$	10,9959
26	2,173	$(3, 9, 14) \rightarrow (4, 9, 13)$	11,4266
29	2,142	$(4, 10, 15) \rightarrow (5, 10, 14)$	12,2357
30	0,616	$(5, 10, 15)^* \rightarrow (1, 5, 10, 14)$	6,3934
	0,243	$(1, 5, 10, 14) \rightarrow (5, 10, 15)^*$	3,3410

Tab. 5.3: Kritische Schichtabstände d_{cr} bei denen Strukturübergänge auftreten. Angegeben ist außerdem die Gesamtenergie E für d_{cr} . Magische Cluster sind mit einem Stern markiert. Die Pfeile geben die Richtung des Übergangs an, wenn d verkleinert wird.

polen übereinstimmt (s. Abschnitt 5.3).

Während die asymptotischen Konfigurationen für $d \rightarrow \infty$ und $d \rightarrow 0$ durch die Coulomb-, bzw. Dipol-Grundzustände des Einschichtmodells bestimmt sind, werden die Konfigurationen im Bereich um $d = a$ durch die besonderen Eigenschaften des Zweischichtsystems verursacht, die sich darin ausdrücken, dass die in-layer und intra-layer Korrelationen von derselben Ordnung sind und das Systemverhalten durch die *dreidimensionale* Struktur geprägt wird. Deutlich wird dies durch den Strukturübergang des System mit $N_x = 12$ (Abb. 5.11). In diesem Fall entsteht durch die Konkurrenz der in-layer und inter-layer Korrelationen die Konfiguration (4,8), welche die stärksten Abweichungen vom hexagonalen zweidimensionalen Grundzustand aufweist: Die beiden Schichten zeigen mit der Mischung aus 4- und 5facher Koordination ein typisches Merkmal eines 3D-Systems (Abb. 5.11, Inset b). Ein ähnliches Verhalten wurde auch für andere Teilchenzahlen beobachtet, die energetisch nahe Schalenkonfigurationen besitzen.

In Tabelle 5.3 sind die Daten der Strukturübergänge für die Cluster der Größe $N_x = 1 \dots 30$ zusammengefasst. Die kritischen Werte wurden durch unabhängige

5. Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d

Monte-Carlo-Simulationen verifiziert. Für die Grenzfälle $d \rightarrow \infty$ und $d \rightarrow 0$ wurde eine exakte Übereinstimmung mit den bekannten Werten des Einschichtmodells mit Coulomb- [13] bzw. Dipol-Wechselwirkung [14] gefunden. Beim Vergleich der Werte für den Limes $d \rightarrow 0$ ist zu beachten, dass die N_x Dipole im Limes des Zweischichtsystems die doppelte Masse derer des Einschichtsystems aufweisen. Im Dipollimes steht die Gesamtenergie des Grundzustandes wie folgt mit d und m in Beziehung: $E \sim d^{4/5}m^{3/5}$. Daher ist das Verhältnis der Energien des Zwei- und Einschichtsystems im Dipolfall proportional zu $2^{3/5}$.

Der Tabelle ist zu entnehmen, dass sich die Strukturübergänge mit zunehmenden N_x häufen. Der kritische Schichtabstand d_{cr} ist dadurch ausgezeichnet, dass zwei Konfigurationen die gleiche niedrigste Energie besitzen. Besonders interessant sind die strukturellen Übergänge, an denen magische Cluster beteiligt sind, weil davon ausgegangen werden kann, dass sich mit den Grundzustandskonfigurationen auch charakteristische Größen wie Rotationsbarrieren oder Schmelzparameter drastisch ändern. Aus der Untersuchung der Übergänge geht hervor, dass sich die Grundzustandsenergie stetig mit d entwickelt. Ähnlich einem Phasenübergang erster Ordnung sind aber in den Ableitung dE/dd am kritischen Punkt d_{cr} Sprünge zu finden.

5.2.2 Energiebeiträge

Zum besseren Verständnis der Strukturübergänge werden in diesem Abschnitt die verschiedenen Beiträge zur Grundzustandsenergie am Beispiel der Cluster mit $N_x = 10$ und $N_x = 12$ Elektron-Loch-Paaren diskutiert. Die Aussagen sind aber auch für die anderen in Tab. 5.3 angegebenen Übergänge gültig.

In Abbildung 5.12 sind die Energiebeiträge zur Gesamtenergie des Clusters mit $N_x = 10$ Elektron-Loch-Paaren dargestellt. Die Gesamtenergie E (orange) setzt sich aus der Wechselwirkung aller Partikel U_{corr} (rot) und ihrer Energie im äußeren Potential U_{conf} (blau) zusammen, wobei sich U_{corr} aus der Summe der intra-layer und inter-layer Wechselwirkungen $U_{corr}^{intra} = U_{corr}^e + U_{corr}^h$ (grün) und $U_{corr}^{inter} = U_{corr}^{e-h}$ (türkis) ergibt. Im Grenzfall $d \rightarrow \infty$ strebt U_{corr}^{inter} gegen null und die Korrelationsenergie U_{corr} ist mit U_{corr}^{intra} identisch (Einschichtsystem). Die Zusammensetzung der Energiebeiträge ist auf Cluster mit anderen Teilchenzahlen übertragbar, da die Energie im Wesentlichen durch die Paarwechselwirkung der indirekten Exzitonen bestimmt wird.

Von besonderer Bedeutung für die Symmetrie und den Grundzustand der Cluster ist die zunehmend stärkere Gewichtung des externen Potentials U_{conf} gegenüber der

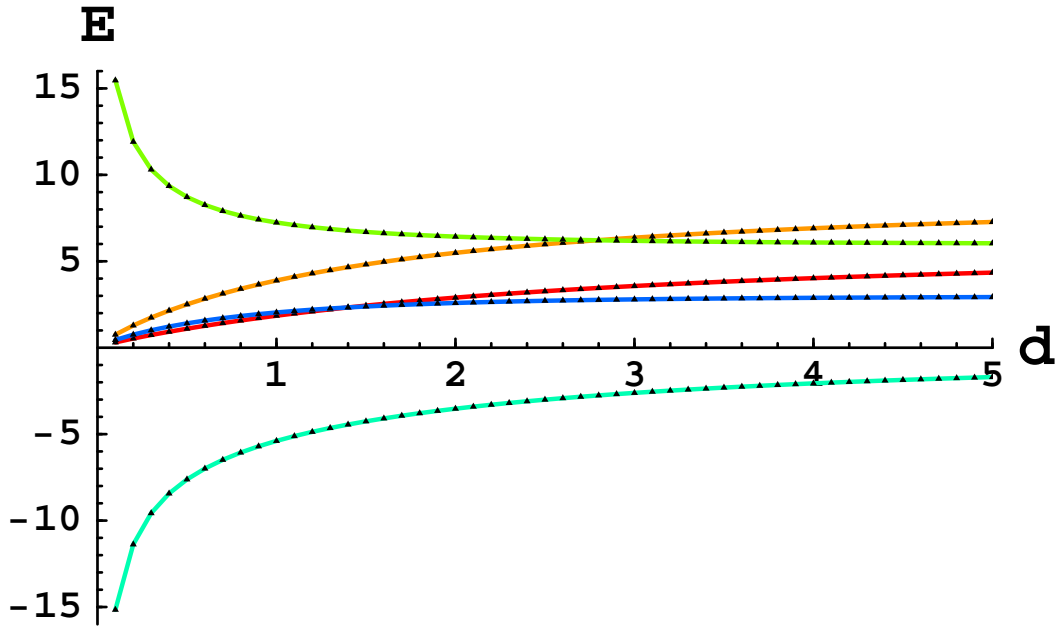


Abb. 5.12: Entwicklung diverser Energiebeiträge als Funktion von d für $N_x = 10$, namentlich die Gesamtenergie $E = U_{corr} + U_{conf}$ (orange), das Fallpotential U_{conf} (blau) sowie die Korrelationsenergie U_{corr} (rot), die sich aus den inter-layer und intra-layer Wechselwirkungen U_{corr}^{inter} (türkis), bzw. U_{corr}^{intra} (grün) zusammensetzt.

Korrelationsenergie U_{corr} an der Gesamtenergie E bei Verkleinerung des Schichtabstandes d (Abb. 5.12). Dies hat zur Folge, dass die Konfigurationen mit mehr Teilchen im Zentrum energetisch bevorzugt werden, wie Tabelle 5.3 zu entnehmen ist: Alle beobachteten Strukturübergänge sind dadurch charakterisiert, dass ein im Einschicht-Coulomb-System metastabiler Zustand, mit einer höheren Teilchenzahl auf den inneren Schalen als der Grundzustand, in einem mittleren Bereich von d energetisch günstiger wird. Der Einfluss der potentiellen Energiebeiträge auf die Strukturübergänge wird im Abschnitt 5.3 an einem Einschichtmodell mit variablem Wechselwirkungspotential weiter untersucht.

Um welche der Grundzustandskonfigurationen es sich in Abb.5.12 handelt ist hingegen nicht ersichtlich, da die Konfiguration die Energie des Clusters nur verhältnismäßig gering, typischerweise um etwa ein Tausendstel, modifiziert. Dies wird aus dem Vergleich der Abbildungen 5.12 und 5.13 deutlich: Um die Grundzustandsstruktur der Cluster zu studieren, ist es notwendig, die Differenzen der Energien

5. Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d

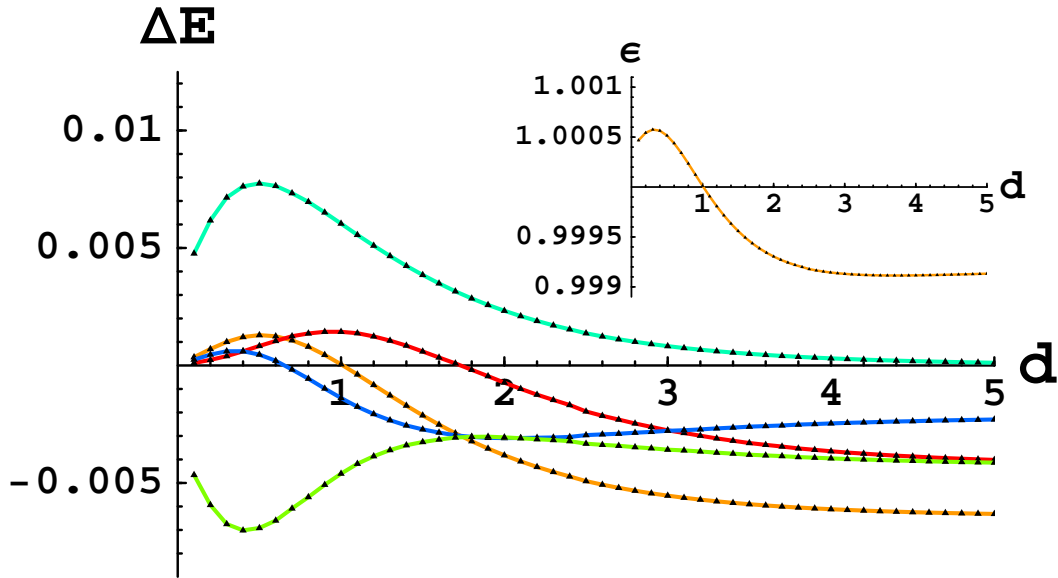


Abb. 5.13: Entwicklung der Energiedifferenzen zwischen den Konfigurationen (2,8) und (3,7) als Funktion von d für $N_x = 10$. Farbwahl analog zu Abb. 5.12: $\Delta E = E(2,8) - E(3,7)$ (orange), ΔU_{conf} (blau), ΔU_{corr} (rot), ΔU_{corr}^{inter} (türkis), ΔU_{corr}^{intra} (grün).
Inset: Energiequotient $\epsilon = E(2,8)/E(3,7)$ über d für $N_x = 10$.

unterschiedlicher Konfigurationen zu betrachten. In den Abbildungen 5.13 und 5.14 sind die Differenzen der Energiebeiträge für die Cluster mit $N_x = 10$, bzw. $N_x = 12$ aufgetragen. Der Differenz der Gesamtenergien $\Delta E = \Delta U_{corr} + \Delta U_{conf}$ lässt sich für endliche d leicht die Grundzustandskonfiguration in Abhängigkeit von d entnehmen. Der Quotient der Gesamtenergien ϵ zeigt auch, welcher der Zustände im Dipollimes $d \rightarrow 0$ stabil ist.

Aus den Energiedifferenzen in Abb. 5.13 und 5.14 geht hervor, dass die intra-layer Korrelationsenergie U_{corr}^{intra} stets gegen einen Konfigurationswechsel wirkt, da für sie die Grundzustandskonfiguration des Einschichtsystems optimal ist. Demgegenüber begünstigt die inter-layer Korrelationsenergie U_{corr}^{inter} jeweils den Strukturübergang. Aus $\Delta U_{corr} = \Delta U_{corr}^{intra} + \Delta U_{corr}^{inter}$ geht hervor, dass ΔU_{corr}^{inter} im Bereich des dreidimensionalen Systemverhaltens um $d = a \approx 1$ gegenüber ΔU_{corr}^{intra} dominiert, d.h. U_{corr} einen Übergang favorisiert. Im Übrigen werden alle gefundenen Strukturübergänge

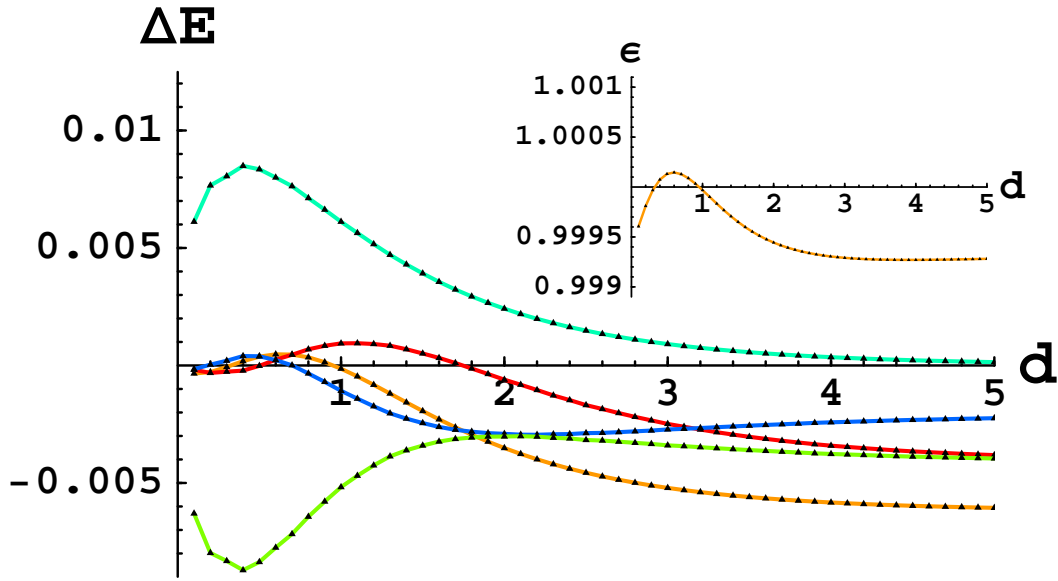


Abb. 5.14: Entwicklung der Energiedifferenzen zwischen den Konfigurationen (3,9) und (4,8) als Funktion von d für $N_x = 12$. Farbwahl analog zu Abb. 5.12: $\Delta E = E(3,9) - E(4,8)$ (orange), ΔU_{conf} (blau), ΔU_{corr} (rot), ΔU_{corr}^{inter} (türkis), ΔU_{corr}^{intra} (grün).
Inset: Energiequotient $\epsilon = E(3,9)/E(4,8)$ über d für $N_x = 12$.

auch durch U_{conf} favorisiert, allerdings jeweils gegenüber U_{corr} zu kleineren d -Werten verschoben. Dies kann auf das Verhältnis von U_{conf} zu U_{corr} zurückgeführt werden, siehe Abschnitt 5.3. Im Vorgriff sei hier angebracht, dass bei $d \approx 3$ der führende Beitrag zur Gesamtenergie zwischen U_{corr} und U_{conf} wechselt ($\alpha = 2$).

An dieser Stelle noch eine Anmerkung zur Berechnung der Energiebeiträge: Im Limes $d \rightarrow 0$ ist eine hohe numerische Genauigkeit erforderlich, da die Korrelationsenergien U_{corr}^{intra} und U_{corr}^{inter} divergieren, andererseits aber die Gesamtenergie E des Systems gegen Null strebt, siehe Abb. 5.12. Bei der Bestimmung der Energiedifferenzen lag neben der hohen, notwendigen Rechengenauigkeit eine Schwierigkeit darin, dass eine kleine Auslenkung der Teilchen im Grundzustand die Gesamtenergie E und damit die auf die Teilchen wirkenden Kräfte kaum verändert, aber die Energiebeiträge U_{conf} und U_{corr} , sowie U_{corr}^{inter} und U_{corr}^{intra} gegeneinander verschiebt, vgl. Abb. 5.14: $\Delta E(d = 0, 3)$. Da die Beschleunigung der Teilchen proportional zu

5. Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d

den Kräften ist, die auf sie wirken, findet bei kleinen, resultierenden Dipolkräften nur eine sehr langsame Bewegung derselben statt. Daher ergibt sich bei kleinen Schichtabständen eine lange Simulationszeit, insbesondere weil die geforderte hohe Genauigkeit einen kleinen Diskretisierungsfehler, d.h. einen kleinen Zeitschritt h , erzwingt. Da bei großem Schichtabstand d die numerischen Anforderungen wesentlich geringer sind, rechtfertigt sich der Einsatz eines Integrators mit adaptiver Schrittweite. Durch die dynamische Anpassung der Schrittweite wird diese für jedes d optimal skaliert, so dass die Rechenzeit drastisch verkürzt werden kann.

In diesem Zusammenhang soll auch darauf hingewiesen werden, dass für kleine Schichtabstände die Potentialbarrieren zwischen den Konfigurationen kleiner werden, so dass es mitunter problematisch ist, die Energien für die metastabilen Konfigurationen zu bestimmen, da die Teilchen leicht in den Grundzustand wechseln. Eine Verbesserung konnte dadurch erreicht werden, dass die Stärke der Anregung zu Beginn jedes Abkühlvorganges an den Schichtabstand gekoppelt wurde.

5.3 Einschichtmodell mit variablem Wechselwirkungspotential

Wie wir gesehen haben, verhält sich das Doppelschichtsystem in den Grenzfällen kleiner und großer d wie ein System aus einer Schicht mit Coulomb-, bzw. Dipol-Abstoßung. Es ist deshalb interessant zu hinterfragen, ob wir für den Fall einer einzelnen Schicht die gleiche Physik erhalten, wenn das Wechselwirkungsgesetz entsprechend angepasst wird. Dieser Aspekt ist experimentell sicherlich nur schwer zugänglich, so dass sich auch hier die Simulation in einem übersichtlichen und flexiblen Modell rechtfertigt.

Eine ähnliche Untersuchung wurde bereits für staubige Plasmen mit dem Debye/Yukawa-Potential durchgeführt [13, 15]. Durch Variation der Abschirmlänge zeigt dieses System sowohl Coulomb-, als auch dipolartiges Verhalten. Hier soll eine andere Wechselwirkung - das Potenzgesetz $1/r^\alpha$ - studiert, d.h., der Grundzustand als Funktion des Exponenten analysiert werden.

5.3.1 Modell

Ausgangspunkt ist die dimensionslose Hamilton-Funktion für den klassischen Grundzustand

$$H = \sum_{i>j}^N \frac{1}{r_{ij}^\alpha} + \sum_i^N r^2 \quad , \quad (27)$$

5.3 Einschichtmodell mit variablem Wechselwirkungspotential

wobei N die Anzahl der Teilchen (Elektronen) und α der Exponent des inversen Teilchenabstandes ist. Dieses Potential schließt sowohl den Coulomb- ($\alpha = 1$) und Dipolfall ($\alpha = 3$) mit ein, als auch Exponenten, die in weiteren Systemen, wie den kolloidalen Plasmen oder selbstorganisierenden Atomschichten auf Oberflächen ($\alpha = 2$) oder Quadrupolen ($\alpha = 5$) u.a. auftreten. Aus diesem Grund wird die Untersuchung auf kleine und große α erweitert. Die Durchführung der Simulationen erfolgt analog zum Zweischichtmodell.

5.3.2 Ergebnisse

In Abbildung 5.15 ist die Energiedifferenz zwischen den Konfigurationen niedrigster Energie für $N = 10$ und $N = 12$ dargestellt. Beide Kurven folgen demselben Trend: Bei kleinem α ist die Energiedifferenz zwischen den Konfigurationen gering, stabiler ist jeweils die Konfiguration, die mit weniger Teilchen auf der inneren Schale populierte ist. Eine Erklärung hierfür liefert das Verhältnis der potentiellen Energien U_{corr} und U_{conf} , siehe Abb. 5.16: Hieraus geht hervor, dass zu kleinerem α der Anteil der Korrelationsenergie zunimmt und für $\alpha < 2$ die Gesamtenergie dominiert. Das bedeutet, dass die Symmetrie und Konfiguration in diesem Bereich, also auch im Coulomb-Fall ($\alpha = 1$), durch das langsam abfallende, abstoßende Wechselwirkungspotential U_{corr} bestimmt wird.

Im Limes großer α , in dem die Wechselwirkung schwach und äußerst kurzreichweitig ist, bestimmt das Fallenpotential die Symmetrie des Clusters. Die Teilchen ordnen sich, ähnlich wie harte Kugeln, in einem dicht gepackten hexagonalen Gitter an. Dadurch wird wieder die Konfiguration mit wenigen Teilchen im Zentrum zum Grundzustand, siehe Abb. 5.15 d): Hier ist die auf der Formation der Elektronen zu gleichseitigen Dreiecken beruhende, parallele Ausrichtung sehr schön zu erkennen. Vergleichen wir ferner die Abbildungen 5.15 und 5.10, so finden wir, dass im Fall zweier Schichten für $N = 10$ die Dipolwechselwirkung geringfügig zu kurzreichweitig ist, um die dicht gepackte Konfiguration (2,8) wieder als Grundzustand zu etablieren (der kritische Exponent ist $\alpha \approx 3, 4$).

Betrachten wir nun den Bereich mittlerer α : Wird α über 1 erhöht, nimmt die relative Stabilität der Konfiguration mit einer hohen Teilchenzahl auf den inneren Schalen zu, da sich der Anteil des Fallenpotentials an der Gesamtenergie relativ zur Korrelationsenergie vergrößert (s. Abb. 5.16). Während für $N = 10$ ein Übergang zur Schalenkonfiguration (3,7) stattfindet, ändert die Energiedifferenz für $N = 12$ ihr Vorzeichen nicht. Interessanterweise deutet sich für $N = 10$ der Übergang durch eine

5. Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d

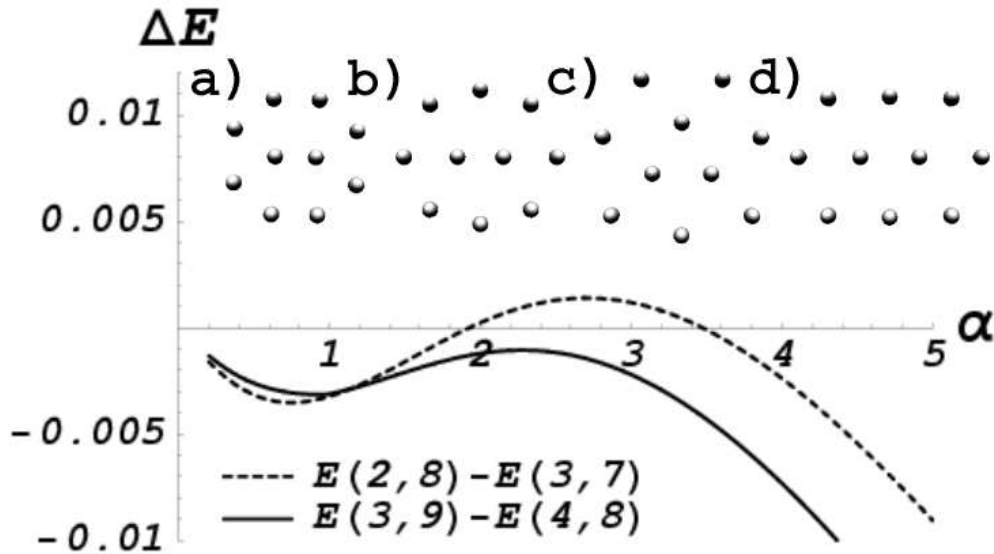


Abb. 5.15: Energiedifferenz zwischen den beiden energetisch günstigsten Zuständen für $N = 10$ und $N = 12$ Elektronen in einer Schicht als Funktion des Wechselwirkungs-Exponenten. Die eingefügten Graphiken zeigen die Grundzustandskonfigurationen für $N = 10$ und $\alpha = 0,65$ (a), $\alpha = 1,0$ (b), $\alpha = 3,0$ (c) sowie $\alpha = 7,0$ (d).

Symmetrieänderung in der (2,8)er Konfiguration bei $\alpha = 0,94$ an, vgl. die Insets a) und b) in Abb. 5.15. (Ein ähnlicher Symmetriewechsel wird auch für andere Teilchenzahlen beobachtet, wie z.B. beim metastabilen Zustand (4,8) für $N = 12$).

Bei den Simulationen stellte sich außerdem heraus, dass einige Konfigurationen nicht über den gesamten Bereich von α existieren, sondern die Potentialbarriere zwischen den lokalen Energieminima für kleine α gegen Null strebt. So ist beispielsweise die Konfiguration (3,7) für $N = 10$ erst ab $\alpha \approx 0.205$ stabil.

Der Vergleich der Resultate mit dem Fall zweier Schichten zeigt, dass die Konfigurationen im Coulomb- und Dipolfall übereinstimmen. Unterschiedliche Grundzustandskonfigurationen ergeben sich jedoch im Bereich mittlerer d , resp. α . So zeigt das Einschichtsystem für $N = 12$, im Gegensatz zum zweilagigen System, keinen Strukturübergang, vgl. Abb. 5.11 und 5.15. Daraus wird ersichtlich, dass die Wechselwirkung im Zweisichtsystem bei mittleren d infolge der starken *inter-layer* Korrelationen qualitativ verschieden ist.

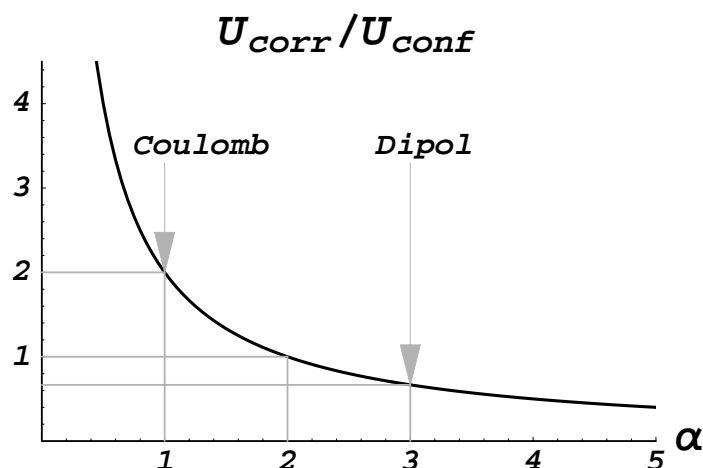


Abb. 5.16: Quotient aus Korrelationsenergie U_{corr} und Fallenpotential U_{conf} für den stabilen Zustand der Teilchen in einer Schicht als Funktion des Wechselwirkungs-Exponenten.

Die Ausführungen zeigen, dass dieses Modell hilfreich für die physikalische Interpretation der Strukturübergänge in Elektron-Loch-Bilayer-Systemen ist. Darüber hinaus können Vorhersagen für andere physikalische Systeme ($\alpha = 2, 5$ etc., wie erwähnt) gemacht werden.

5.4 Schlußfolgerungen

Es zeigte sich, dass die Methode des Simulated Annealing als Technik der Molekulardynamik zur Bestimmung der Grundzustände geeignet ist und für mesoskopische Cluster schnell konvergiert. Dennoch sollte es im Bereich kleiner Schichtabstände möglich sein, mit einer Monte-Carlo-Simulation eine schnellere Konvergenz zu erzielen.

Die Analyse der klassischen Grundzustandskonfigurationen der symmetrischen Elektron-Loch-Cluster liefert als wichtiges Resultat die Daten für die Strukturübergänge. Um zu überprüfen, inwieweit diese Ergebnisse auf Quantensysteme übertragbar sind, wurden von A.V. Filinov Pfadintegral-Monte-Carlo-Simulationen (PIMC) durchgeführt, bei denen von den in dieser Arbeit vorhergesagten kritischen Schichtabständen ausgegangen wurde. Die vorläufigen Resultate bestätigen das qualitativ gleiche Verhalten für den Quanten-Elektron-Loch-Cluster. Unter Berücksichtigung der quantenmechanischen Nullpunktsenergie und der endlichen räumlichen Aus-

5. Grundzustände und Strukturübergänge bei Änderung des Schichtabstandes d

dehnung der Wellenfunktionen der Elektronen und Löcher wurden für die Fälle $N_x = 10, 12$ die gleichen Grundzustandskonfigurationen und ähnliche Werte d_{cr} gefunden [19]. Es ist dennoch nicht auszuschließen, dass für andere Werte von N_x das Quantensystem andere Struktureigenschaften aufweist - eine Frage, die derzeit noch untersucht wird.

Offen steht außerdem die spannende Frage, wie der fest-flüssig Phasenübergang und damit die elektrischen Eigenschaften durch den Strukturübergang beeinflusst werden. Es ist zu erwarten, dass die Schmelzlinie, insbesondere wenn magische Cluster (siehe auch Abschnitt 2.3.1) am Strukturübergang beteiligt sind, signifikant verschoben wird, so dass die Beweglichkeit der Teilchen und damit die Leitfähigkeit in einem kritischen Temperatur- und Dichtebereich über den Parameter d gesteuert werden kann.

6 Anregungsspektrum der Normalmoden

Bei endlichen Temperaturen fluktuieren die Teilchen um ihre Gleichgewichtsposition. Eine auf den Grundzustandskonfigurationen der Cluster basierende Anwendung stellt die Normalmoden-Analyse dieser kollektiven Teilchenoszillationen (Gitterschwingungen) dar. Die Kenntnis der Normalmoden eines System erlaubt einen Einblick in den zugrundeliegenden Mechanismus der Teilchenwechselwirkung. Die dynamischen Eigenschaften klassischer Einschicht- und Zweischicht-Elektronen-Cluster waren bereits Gegenstand theoretischer und experimenteller Untersuchungen [17, 18, 4]. In diesem Kapitel werden diese Resultate auf Elektron-Loch-Bilayer erweitert. Es werden die Eigenvektoren und Eigenwerte in Abhängigkeit vom Schichtabstand untersucht und Ergebnisse zu den spektralen Eigenschaften der Elektron-Loch-Cluster präsentiert. Ferner können aus den Eigenmoden Schlüsse über den Schmelzprozess abgeleitet werden.

6.1 Theoretische Grundlagen

Im Grundzustand sind die Teilchen an den Gitterplätzen des Wigner-Kristalls lokalisiert. Werden sie mit einem kleinen Energiebetrag angeregt, können sie sich in einer hinreichend kleinen Umgebung frei bewegen, da die resultierende Kraft an den stationären Punkten auf der Energiehyperfläche gleich null ist (s. Abschn. 4.1). Ihre Dynamik lässt sich nach der klassischen Mechanik als Überlagerung sogenannter Eigenmoden darstellen, deren Schwingungsfrequenz durch die rücktreibenden Bindungskräfte bestimmt ist.

Im Folgenden sei $\vec{R} = (R_{x_1}, R_{y_1}, R_{x_2}, R_{y_2}, \dots, R_{x_N}, R_{y_N})$ der Vektor der Gleichgewichtskoordinaten und $\vec{r}(t) = (x_1, y_1, x_2, y_2, \dots, x_N, y_N)$ der Vektor der momentanen Positionen der $i = 1, \dots, 2N$ Teilchen. Für kleine Auslenkungen $\vec{u}(t) = \vec{r}(t) - \vec{R}$ der Partikel aus ihrer Ruhelage liefert die Entwicklung der potentiellen Energie U um U_0

$$U(\vec{r}) = U_0 + \sum_i^{2N} \underbrace{\frac{\partial U}{\partial r_i} \Big|_{\vec{R}_i}}_{=0} u_i + \frac{1}{2} \sum_{i,j}^{2N} \underbrace{\frac{\partial^2 U}{\partial r_i \partial r_j} \Big|_{\vec{R}_i}}_{=: \mathcal{H}_{i,j}} u_i u_j + \dots \quad , \quad (28)$$

wobei U_0 das globale Minimum der potentiellen Energie (Bindungsenergie) ist. Der

6. Anregungsspektrum der Normalmoden

lineare (Kraft-)Term ist für die Gleichgewichtsposition der Teilchen per definitionem null, da diese gerade dadurch gekennzeichnet ist, dass sich die auf jedes Teilchen wirkenden Kräfte kompensieren. Die quadratische Ordnung liefert die Matrixelemente $\mathcal{H}_{i,j}$ der Hesse-Matrix \mathcal{H} . In der *harmonischen Näherung* werden die Terme höherer Ordnung vernachlässigt, so dass die abgeleiteten Resultate nur für hinreichend kleine Auslenkungen, bzw. Anregungen, gültig sind. In Bezug auf den in Abb. 3.4 dargestellten (eindimensionalen) Fall zweier Elektronen in einer Schicht besteht die harmonische Näherung demnach darin, dass die Potentialmulde durch eine Parabel approximiert wird.

Zur Bestimmung der Eigenmoden wird von der symmetrischen $2N \times 2N$ Hesse-Matrix ausgegangen

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} \frac{\partial^2 U}{\partial x_1 \partial x_1} & \frac{\partial^2 U}{\partial x_1 \partial y_1} & \cdots & \frac{\partial^2 U}{\partial x_1 \partial y_N} \\ \frac{\partial^2 U}{\partial y_1 \partial x_1} & \frac{\partial^2 U}{\partial y_1 \partial y_1} & \cdots & \frac{\partial^2 U}{\partial y_1 \partial y_N} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial^2 U}{\partial y_N \partial x_1} & \frac{\partial^2 U}{\partial y_N \partial y_1} & \cdots & \frac{\partial^2 U}{\partial y_N \partial y_N} \end{pmatrix}. \quad (29)$$

Es ist zu beachten, dass nicht nur die Anzahl der Matrixelemente mit N quadratisch anwächst, sondern auch die Zahl der im Potential U zu berücksichtigenden Wechselwirkungsterme. Die Eigenwerte der Hesse-Matrix sind mit den Nullstellen des charakteristischen Polynoms $p(\lambda) = \det(\mathcal{H} - \lambda \mathcal{I})$ identisch. Da die Matrix der zweiten Ableitungen symmetrisch und reell ist, hat die Gleichung $p(\lambda) = 0$ $2N$ reelle Lösungen λ_i . Aus der linearen Algebra ist bekannt, dass Eigenwertgleichungen bei Matrizen der Ordnung $n > 4$ im Allgemeinen nicht geschlossen lösbar sind. D.h., man kann keine algebraischen Ausdrücke für die Eigenwerte und Eigenvektoren nichttrivialer Cluster ($N > 2$) erwarten, da die zu lösende Polynomgleichung höher als vierten Grades ist. Demzufolge waren die Eigenwerte und Eigenvektoren nur numerisch zu bestimmen.

6.2 Umsetzung

Zur Berechnung der Eigenfrequenzen als Funktion des Schichtabstandes ist zunächst die d -Abhängigkeit der jeweiligen Konfiguration zu ermitteln. Von den numerischen Resultaten ausgehend (s. Kap. 5), konnten für die Cluster mit $N_x \leq 8$ analytische

Ausdrücke¹⁸ bestimmt werden. Als Ansatz diente die symmetrische Anordnung der Teilchen auf der kreisförmigen (äußeren) Schale.

Zur numerischen Bestimmung der Eigenvektoren und Eigenwerte wurde das kommerzielle Computer-Algebra-System (CAS) *Mathematica* verwendet. Die berechneten $2N$ orthonormierten Eigenvektoren erfüllen die Anforderungen an eine Basis bezüglich der Vollständigkeit, Orthogonalität und Normierung. Für ein Minimum auf der Potentialenergie-Hyperfläche ist gefordert, dass alle Eigenwerte der Matrix der zweiten Ableitungen positiv sind, d.h. \mathcal{H} positiv definit ist.¹⁹ Da also im stabilen Gleichgewicht von $\lambda_i > 0$ ausgegangen werden kann, folgt aus der Lösung der Bewegungsgleichungen, dass die Eigenwerte proportional zum Quadrat der jeweiligen Schwingungsfrequenz sind: $\lambda_i = \omega_i^2$. Die Frequenzen ω_i sind im Folgenden in Einheiten von $\omega_0/\sqrt{2}$ angegeben.

6.3 Ergebnisse

Die Eigenvektoren und Eigenwerte der Grundzustandskonfiguration wurden aus der Hesse-Matrix \mathcal{H} für eine große Zahl von d -Werten berechnet. Die Resultate für $N_x = 3$ und $N_x = 8$ sind in den Abbildungen 6.18, bzw. 6.19 dargestellt. Die Insets zeigen die Eigenvektoren und Eigenwerte für $\delta = 1, 3$. Es gibt jeweils $2N$, resp. $4N_x$, Normalmoden. Die meisten dieser orthogonalen Moden sind zweifach entartet.

Interessanterweise gibt es drei universelle Eigenmoden, die von der Teilchenzahl N_x unabhängig sind, siehe Abb. 6.17:

- A) „*Breathing*“-Mode, d.h. kohärente radiale Bewegung (Kontraktion/Expansion) aller Teilchen.
- B) *Schwingung des Massenschwerpunkts*, $\omega^2 = 2$ (zweifach entartet),
- C) *Rotation des gesamten Systems*, $\omega^2 = 0$,

Für A) konnte ein exaktes analytisches Resultat für die Eigenfrequenz ω_{br}^2 abgeleitet werden, das auf die große Klasse von Wechselwirkungen der Form $U(r) \sim \frac{e^2}{r^{1+p}}$

¹⁸Ein numerisches Verfahren, das den Grundzustand für beliebige Clustergrößen liefert, wurde zwar implementiert (siehe Kap. 4), die Berücksichtigung bei der Berechnung der Energiespektren steht aber noch aus und wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt.

¹⁹Aus der Kreissymmetrie des Fallenpotentials, bzw. resultierenden freien Rotation des Gitters, folgt für den kleinsten Eigenwert $\lambda_j = 0$ (d.h. die Periodendauer dieser Schwingung ist unendlich).

6. Anregungsspektrum der Normalmoden

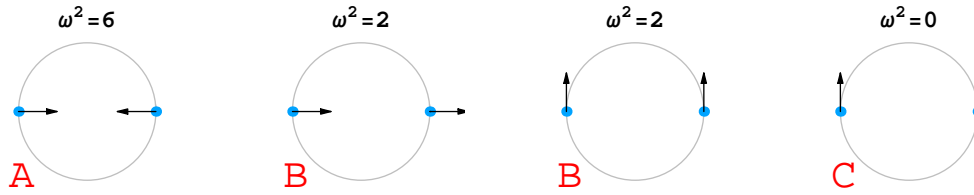


Abb. 6.17: Vollständiger Satz von Eigenvektoren und Eigenwerte für 2 Elektronen in einer Schicht (vgl. Abb. 3.4). Bei den universellen Eigenmoden B und C handelt es sich um die „triviale“ Bewegung des Massenschwerpunktes gemäß den drei Freiheitsgraden des starren Körpers. Die Rotationsmode C ändert die potentielle Energie nicht (Bewegung auf der Äquipotentiallinie).

anwendbar und somit speziell auch für die Coulomb-, Dipol-, Quadrupol-Wechselwirkung gültig ist:

$$\omega_{br}^2 = 2m^*(3 + p) = \begin{cases} 6, & p = 0 \quad \text{Coulomb} \\ 10, & p = 2 \quad \text{Dipol} \\ 14, & p = 4 \quad \text{Quadrupol} \end{cases} .$$

Dabei bezeichnet $m^* = m/m_e$ die relevante Teilchenmasse in Einheiten der Elektronenmasse m_e . In Übereinstimmung mit den bekannten Resultaten [17, 18] erhalten wir im Grenzfall separater Schichten ($d \rightarrow \infty$), infolge der Coulomb-Wechselwirkung der Teilchen in jeder Schicht, $\omega_{br}^2 = 6$ ($m^* = m_{e(h)}/m_e = 1$). Analog ergibt sich im Grenzfall klassischer, via Dipolpotential wechselwirkender Exzitonen ($d \rightarrow 0$) je Elektron (resp. Loch) $\omega_{br}^2 = 10$, bzw. $\omega_{br}^2 = 20$ bei Angabe pro Elektron-Loch-Paar ($m^* = (m_e + m_h)/m_e = 2$). [10]

Daneben sind zwei Typen von Moden zu unterscheiden: zum einen gibt es jene, bei denen sich die Elektronen und Löcher *gleichphasig* bewegen, wie z.B. für $N_x = 3$ die Moden #2, #5, #6, #9, #10, #12. Die anderen sind durch eine *gegenphasige* Bewegung gekennzeichnet, wie die übrigen der insgesamt 12 Eigenmoden zeigen (Abb. 6.18). Im Limes $d \rightarrow \infty$ führt dies bei verschwindender inter-layer Korrelation zu einer - zusätzlich zu der oben genannten - zweifachen Entartung der Eigenfrequenzen.

Die Analyse des Energiespektrums und der Normalmoden als Funktion von d ist entscheidend für das Verständnis des Schmelzszenarios in Doppelschichtsystemen:

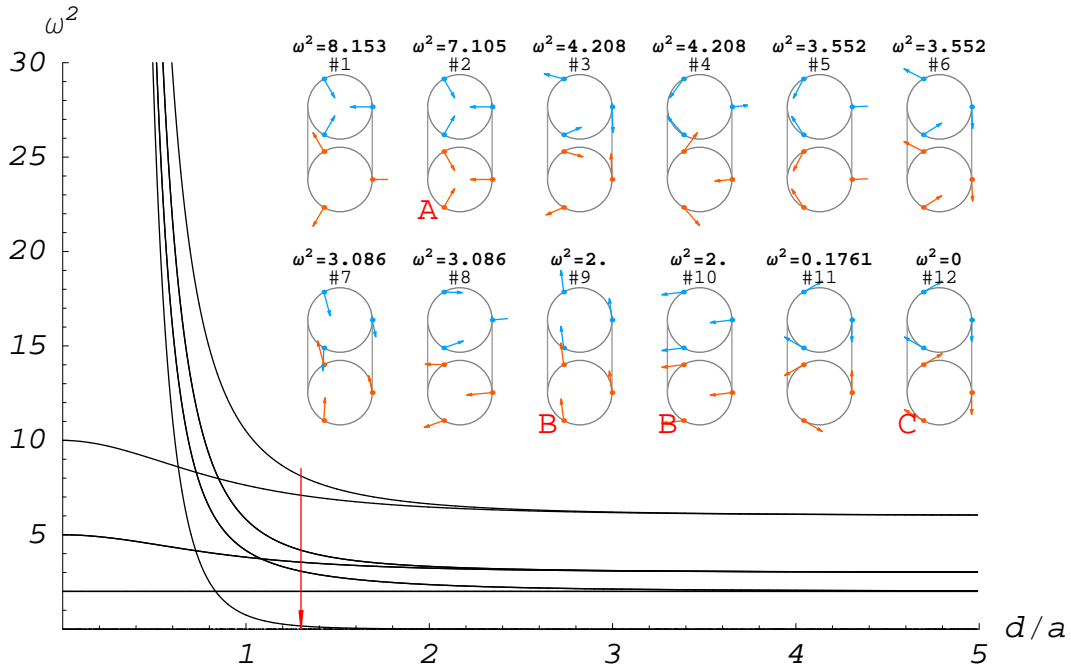


Abb. 6.18: Anregungsspektrum der Normalmoden für $N_x = 3$ Elektron-Loch-Paare als Funktion des Schichtabstandes d . Das Inset zeigt die insgesamt 12 Eigenvektoren und Eigenwerte für $d/a = 1, 3$ in energetisch absteigender Reihenfolge (siehe Pfeil). Die universellen Eigenmoden sind mit Buchstaben gekennzeichnet.

- Für $\delta > 1$ hat die gegenphasige Rotation der Schalen in der Elektron- und Lochschicht die geringste Energie²⁰, siehe Mode #11 in Abb. 6.18 und Mode #31 in Abb. 6.19. Daraus folgt, dass bei Erhöhung der Temperatur, bzw. der Dichte im Quantensystem (s. Abschn. 2.2), die Schichten entkoppeln und die Inter-Well-Exzitonen zerstört werden. Dieses Szenario entspricht dem Übergang Exzitonenkristall \implies Coulomb-Kristall.
- Für $\delta < 1$ ist die niedrigste Anregungsenergie durch die paarweise, gekoppelte Bewegung der Elektronen und Löcher bestimmt. Die energetisch günstigste Mode ist in diesem Bereich N -abhängig und entspricht für $N_x = 3$ in Abb. 6.18 den (entarteten) Moden #9, #10 und für $N_x = 8$ in Abb. 6.19 den Moden #29,

²⁰Die Rotation des Gesamtsystems, $\omega^2 = 0$, sei aufgrund der Rotationsinvarianz der Hamilton-Funktion vernachlässigt.

6. Anregungsspektrum der Normalmoden

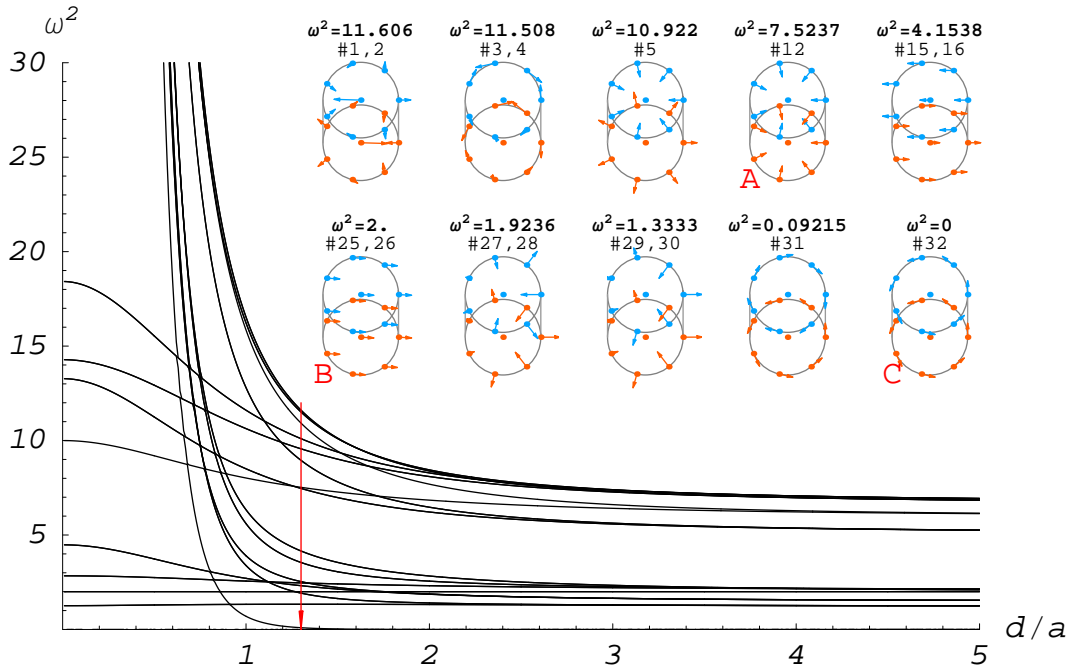


Abb. 6.19: Anregungsspektrum der Normalmoden für $N_x = 8$ Elektron-Loch-Paare als Funktion des Schichtabstandes d . Der Einsatz zeigt eine Auswahl der insgesamt 32 Eigenvektoren und Eigenwerte für $d/a = 1, 3$ in energetisch absteigender Reihenfolge (siehe Pfeil). Die (zweifach) entarteten Moden wurden zusammengefasst.

#30. Der resultierende Kristallschmelzprozess verläuft über den Phasenübergang: Exzitonenkristall \implies Exzitonenflüssigkeit, d.h. die Exzitonen bleiben erhalten. [10]

6.4 Weitere Schritte

Die in diesem Kapitel präsentierten Normalmodenspektren eröffnen einen Zugang zur Dynamik klassischer Elektron-Loch-Cluster. Von Interesse bei weiteren Untersuchungen sind u.a. die Eigenschaften der energetisch niedrigsten Moden, insbesondere im Bereich kleiner Schichtabstände $\delta < 1$. Ein besonders interessanter Verlauf des Energiespektrums ist für die Teilchenzahlen, bei denen strukturelle Übergänge beobachtet wurden, im Bereich der kritischen Schichtabstände zu erwarten. Dabei ist zu prüfen, ob ein sogenanntes „softening“ einzelner Moden stattfindet. In die-

sem Zusammenhang steht außerdem die Frage, wie sich die einzelnen strukturellen Übergänge gezielt anregen lassen.

Eine weitere reizvolle Aufgabe besteht darin, in dem hier auf klassische Punktteilchen angewendeten Verfahren ein effektives Potential zu verwenden, das das endliche Phasenraumvolumen, welches die Partikel gemäß der Quantenmechanik auch bei $T = 0$ einnehmen, berücksichtigt. Damit wäre es möglich, die spektralen Eigenschaften eines stark korrelierten Quantensystems, d.h. im Regime kleiner Überlappungen der Wellenfunktionen $r_s \gg 1$, zu erfassen und u.a. die unphysikalischen Divergenzen der Energie im Bereich $\delta < 1$, die sich im Fall einer gegenphasigen Bewegung der Elektronen und Löcher ergeben (s. Abb. 6.18 und 6.19), zu eliminieren.

6. Anregungsspektrum der Normalmoden

7 Zusammenfassung und Ausblick

Niederdimensionale Elektron-Loch-Systeme in Halbleiter-Heterostrukturen und Quantenpunkten sind von zunehmendem experimentellen und theoretischen Interesse. Eine Besonderheit dieser Coulomb-Systeme ist der langreichweitige Charakter der Wechselwirkung und die aus der starken Kopplung der Teilchen erwachsende Vielfalt an qualitativ neuen physikalischen Effekten. Ein Aspekt sind die bei niedrigen Temperaturen und Dichten beobachtbaren mesoskopischen Wignerkristalle, deren strukturelle und spektrale Eigenschaften in dieser Arbeit näher untersucht wurden. Diese bizarren Kristalle sind aufgrund ihrer nichttrivialen Schmelzeigenschaften [3] und ihrem technologischen Potential u.a. in Hinblick auf Anwendungen in der Einzelladungselektronik interessant [38, 43].

Ein zentrales Merkmal der betrachteten Elektron-Loch-Bilayer-Kristalle besteht in der d -Abhängigkeit der *intra-layer* Wechselwirkung der Teilchen. Im Grenzfall großer d findet man zwei separierte Einschichtsysteme mit Coulomb-Abstoßung zwischen den Teilchen. Demgegenüber ist der Grundzustand des Systems bei kleinen Schichtabständen als ein Kollektiv von räumlich lokalisierten Dipolen („klassischen Exzitonen“) aufzufassen, die miteinander in Dipolwechselwirkung stehen. Bemerkenswert ist, dass in beiden Regimen ein unterschiedlicher exponentieller Zusammenhang zwischen wichtigen Systemgrößen, wie dem mittleren Teilchenabstand und der potentiellen Energie, und der Masse der Teilchen, ihrer Ladung sowie der Frequenz des harmonischen Fallenpotentials gefunden wurde [10]. Während die asymptotischen Grundzustandskonfigurationen durch ein an die effektive Wechselwirkung angepasstes Einschichtmodell erfasst werden können, wird der Grundzustand in einem Bereich um $d = a$ zusätzlich durch die für ein Zweischichtsystem charakteristischen *inter-layer* Korrelationen beeinflusst. Ein Effekt dieser 3D-Strukturen ist daher die Konkurrenz zwischen den *intra-* und *inter-layer* Wechselwirkungen der Partikel. Der Wettstreit dieser beiden Einflüsse führt zu dem neuartigen Verhalten, dass sich die Grundzustandskonfigurationen - und damit verbunden die physikalischen Eigenschaften des Bilayer-Wigner-Kristalls - von denen des entsprechenden Einschichtsystems unterscheiden.

Ein wesentliches Ziel dieser Arbeit war es, die Grundzustandskonfiguration mesoskopischer Elektron-Loch-Bilayer in Abhängigkeit von der Teilchenzahl N_x und

7. Zusammenfassung und Ausblick

dem Schichtabstand d systematisch auf strukturelle Übergänge zu untersuchen und diese qualitativ zu beschreiben. Zur numerischen Lösung dieses komplexen Optimierungsproblems wurde ein Molekulardynamik-Programm auf Basis eines Runge-Kutta-Integrators 5. Ordnung mit automatischer Schrittweitenanpassung entwickelt. Die Strukturbildung erfolgte durch langsames Abkühlen des Clusters. Dieses Vorgehen wird durch die Theorie des Simulated Annealings gestützt. Zur effizienten Auswertung der berechneten Konfigurationen wurde das MD-Visualisierungsprogramm DAVI implementiert. Dieses Programm ermöglicht es, die zeitlichen Bewegungsabläufe der Teilchen bzw. die Änderung der Teilchenformation als Funktion des Schichtabstandes d animiert wiederzugeben. Hilfreich für die Analyse der Daten ist, dass der Anwender die Bildschirmausgabe interaktiv steuern kann. Eine Besonderheit ist weiterhin die hochwertige 3D-Graphik, die auf dem Industriestandard OpenGL aufsetzt.

Um für alle Cluster bis einschließlich $N_x = 30$ über den kompletten Bereich von d verlässliche Aussagen über das globale Minimum der d -abhängigen Potentiallandschaft treffen zu können, war aufgrund des numerischen Umfangs der Rechnungen eine aufwändige Laufzeitoptimierung des Programms erforderlich. Erschwert wurden die Untersuchungen durch die Anzahl sowie vor allem die energetische Dichte der stabilen und metastabilen Konfigurationen. Als Ergebnis der Simulationen konnten die kritischen Werte für die strukturellen Übergänge mit hoher Genauigkeit bestimmt werden. Zur physikalischen Begründung der Strukturübergänge wurde die Entwicklung der verschiedenen Energiebeiträge zur Grundzustandsenergie als Funktion des Schichtabstandes analysiert und überdies ein Einschichtmodell mit variablem Wechselwirkungspotential herangezogen [19]. Die verwendete Simulationstechnik hat sich als geeignetes Instrument zur Untersuchung der Grundzustandseigenschaften mesoskopischer Systeme erwiesen. Es ist aber davon auszugehen, dass Monte-Carlo-Simulationen im Bereich kleiner Schichtabstände ($\delta < 0,3$) schneller konvergieren. Der Vorteil der MD-Simulation liegt jedoch darin, dass der erprobte Code zukünftig auch für Untersuchungen dynamischer Prozesse eingesetzt werden kann. Auf obigen Resultaten aufbauend konnte darüber hinaus das Normalmodenspektrum klassischer Elektron-Loch-Cluster präsentiert werden. Die Eigenfrequenzen als Funktion der Schichtseparation sowie eine Klassifizierung der Eigenmoden geben u.a. Aufschluss über den Schmelzprozess in bipolaren Doppelschichtsystemen [10]. Von Interesse sind die Resultate dieser Arbeit auch im Hinblick auf die Möglichkeit der gezielten Anregung bzw. Kontrolle kollektiver Prozesse (und damit etwa der Leitfähigkeit) [43].

Die hier vorgestellten Ergebnisse liefern einen Beitrag zum Verständnis der Physik mesoskopischer Coulombsysteme, insbesondere von Elektron-Loch-Clustern. Sie beschränken sich aber auf einen kleinen Parameterbereich, bei dem kristallartiges Verhalten vorliegt. Mesoskopische Systeme besitzen jedoch ein viel reichhaltigeres Spektrum an Phänomenen. So zeigen sich bei höheren Dichten eine Reihe von interessanten Effekten quantenphysikalischer Natur, wie z.B. Spineffekte. Erhebliches Forschungsinteresse gründet sich in diesem Zusammenhang vor allem auf die prinzipielle Möglichkeit der Bose-Einstein-Kondensation [34]. Darüber hinaus sollten diese Systeme auch sehr gut als „q-bits“ geeignet sein, die die Grundlage des sogenannten Quantencomputing darstellen [35].

7. Zusammenfassung und Ausblick

A Verzeichnis verwendeter Symbole

Symbol/Definition	Größe/Konstante
N	Teilchenzahl ($N = N_e + N_h$)
N_e	Anzahl der Elektronen
N_h	Anzahl der Löcher
N_x	Anzahl der Elektron-Loch-Paare
d	senkrechter Schichtabstand
a	mittlerer Teilchenabstand
δ	relativer Schichtabstand ($\delta = d/a$)
a_B	Bohrscher-Radius
r_s	Brueckner-Parameter
Γ	Coulomb-Kopplungsparameter (Plasmaparameter)
E	Gesamtenergie ($E = K + U$)
K	kinetische Energie
U	potentielle Energie ($U = U_{corr} + U_{conf}$)
U_{corr}	Korrelationsenergie
U_{conf}	externes Potential
T	Temperatur
n	Dichte
D	Dimensionalität des Systems
k_B	Boltzmann-Konstante
e	Elementarladung
q	Ladung
m	Masse
m_e	Ruhemasse des Elektrons
ε	$\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_b$
ε_0	Dielektrizitätskonstante des Vakuums ($\varepsilon_0 = 1/\mu_0 c^2$)
ε_b	dielektrische Konstante des Mediums
μ_0	Permeabilität des Vakuums ($\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$)
h	Planck'sches Wirkungsquantum ($h = 2\pi\hbar$)
c	Lichtgeschwindigkeit

A. Verzeichnis verwendeter Symbole

B Veröffentlichungen zu den Resultaten der Diplomarbeit

Ein Teil der Resultate dieser Arbeit wurde publiziert, bzw. auf internationalen Fachtagungen präsentiert:

Publikationen

- [1] A.V. Filinov, P. Ludwig, V. Golubnychi, M. Bonitz und Yu.E. Lozovik,
Equilibrium and dynamical properties of few particle systems in quantum dots and bilayers,
phys. stat. sol. (c) **0**, No. 5, 1518-1522 (2003)
- [2] P. Ludwig, A. Filinov, M. Bonitz und Yu.E. Lozovik,
Ground state and structural transitions in mesoscopic electron-hole bilayers,
Contrib. Plasma Phys. **43**, No. 5-6 285-289 (2003)
- [3] V. Golubnychi, P. Ludwig, A.V. Filinov und M. Bonitz,
Angular current control in mesoscopic electron and electron-hole bilayers,
Superlattices and Microstructures, zur Publikation eingereicht

Tagungen

- [1] A. Filinov, V. Golubnychi, P. Ludwig, M. Bonitz und Yu.E. Lozovik,
Equilibrium and dynamical properties of few particle systems in single and coupled e-h-quantum dots,
NOEKS 7, Karlsruhe 2003
- [2] A.V. Filinov, P. Ludwig, M. Bonitz und Yu.E. Lozovik,
Mesoscopic excitonic clusters in coupled quantum dots,
Physics of Nonideal Plasmas XI, Valencia 2003
- [3] M. Bonitz, P. Ludwig, A.V. Filinov, V. Golubnychi und Yu.E. Lozovik,
Electron and exciton ordering in vertically coupled quantum dots,
6th International Conference on New Phenomena in Mesoscopic Systems, Hawaii 2003

B. Veröffentlichungen zu den Resultaten der Diplomarbeit

Literatur

- [1] V.M. Bedanov, F.M. Peeters, *Ordering and phase transitions of charged particles in a classical finite two-dimensional system*, Phys. Rev. B **49**, 2667 (1994)
- [2] A.V. Filinov, Yu.E. Lozovik und M. Bonitz, *Path integral simulations of crystallization of quantum confined electrons*, phys. stat. sol. (b) **221**, 231 (2000)
- [3] A.V. Filinov, M. Bonitz und Yu.E. Lozovik. *Wigner crystallization in mesoscopic 2D electron systems*, Phys. Rev. Lett. **86**, 3851 (2001); Physical Review Focus, 19 April (2001); Spektrum der Wissenschaft, Juni 2001, S. 25
- [4] B. Partoens, V.A. Schweigert und F.M. Peeters, Phys. Rev. Lett. **79**, 3990 (1997)
- [5] G. Kalman, V.V. Valtchinov und K.I. Golden, Phys. Rev. Lett. **82**, 3124 (1999)
- [6] I.V. Schweigert, V.A. Schweigert und F.M. Peeters, Phys. Rev. Lett. **82**, 5293 (1999)
- [7] A.V. Filinov, M. Bonitz und Yu.E. Lozovik, *Two-dimensional electron crystals in single and double layers*, Contrib. Plasma Phys. **41**, 357 (2001)
- [8] Einen Überblick liefert: *Strongly Coupled Coulomb Systems*, G. Kalman (Hrsg.), Plenum Press (1998)
- [9] A. Filinov, M. Bonitz und Yu.E. Lozovik, J. Phys. A: Math. Gen. **36**, 5899 (2003)
- [10] A.V. Filinov, P. Ludwig, V. Golubnychi, M. Bonitz und Yu.E. Lozovik, *Equilibrium and dynamical properties of few particle systems in quantum dots and bilayers*, phys. stat. sol. (c) **0**, No. 5, 1518-1522 (2003)
- [11] E. Anisimovas und F.M. Peeters, Phys. Rev. B **66**, 075311 (2002)
- [12] G. Goldoni und F.M. Peeters, Phys. Rev. B **53**, 4591 (1996)
- [13] M. Kong, B. Partoens und F.M. Peeters, Phys. Rev. E **65**, 046602; New J. Phys. **5**, 23.1 (2003)
- [14] A.I. Belousov und Yu.E. Lozovik, arXiv:cond-mat/9806108

Literatur

- [15] G.E. Astrakharchik, A.I. Belousov und Yu.E. Lozovik, *Properties of two - dimensional dusty plasma clusters*, arXiv:cond-mat/9905193
- [16] A. Filinov, V. Golubnychij, P. Ludwig, M. Bonitz und Yu.E.Loosovik, *Equilibrium and dynamical properties of few particle systems in single and coupled e-h-quantum dots*, Poster auf der NOEKS, Karlsruhe (2003)
- [17] V.A. Schweigert and F.M. Peeters, *Spectral properties of classical two-dimensional clusters*, Phys. Rev. B **51**, 7700 (1995)
- [18] A. Melzer, *Mode Spectra of Thermally Excited 2D Dust Coulomb Clusters*, Phys. Rev. E **67**, 016411 (2003)
- [19] P. Ludwig, A. Filinov, M. Bonitz und Yu.E. Loosovik, *Ground state and structural transitions in mesoscopic electron-hole bilayers*, Contrib. Plasma Phys. **43**, No. 5-6 285-289 (2003)
- [20] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, B.P. Flannery, *Numerical Recipes in C*, Camebridge University Press, (1992), Kap. 16: Integration of Ordinary Differential Equations
- [21] J.M. Haile, *Molecular Dynamics Simulation - Elementary Methods*, John Wiley & Sons, Inc, New York, 1992
- [22] P.J.M. Van Laarhoven, E.H.L. Aarts, *Simulated annealing: theory and applications*, D. Reidel, Dordrecht, 1987
- [23] Für eine ausführliche mathematische Behandlung dieses Problems sei verwiesen auf: I.E. Farquhar, Interscience Publishers, *Ergodic Theory in Statistical Mechanics*, N. Y. (1964)
- [24] K.-P. Nos, *Untersuchungen hochdimensionaler Potentialflächen von Clustern*, Diplomarbeit, Gerhard-Mercator-Universität - Gesamthochschule Duisburg (1999)
- [25] E.M. Pearson, T. Halicioglu und W.A. Tiller, *Laplace-transform technique for deriving thermodynamic equations from the classical microcanonical ensemble*, Phys. Rev. A **32**, 3030-3039 (1985)
- [26] M. Bonitz, *Quantendynamik korrelierter Coulombsysteme*, Physik Journal Juli/August 2002 69-75

- [27] E. Wigner, *On the Interaction of Electrons in Metals*, Phys. Rev. **46**, 1002-1011 (1934)
- [28] C.C. Grimes und G. Adams, *Evidence for a Liquid-to-Crystal Phase Transition in a Classical, Two-Dimensional Sheet of Electrons*, Phys. Rev. Lett. **42**, 795 (1979).
- [29] E.Y. Andrei, F.J.B. Williams, D.C. Glattli und G. Deville, *Experiments on Two-Dimensional Wigner Crystals*, In: „Physics of Low-Dimensional Semiconductor Structures“, P. Butcher, N.H. March, M.P. Tosi (Hrsg.), Plenum Press, New York (1993), S. 499 ff.
- [30] M. Block, H. Leuthner, P. Seibert und G. Werth, *Crystalline ion structures in a Paul trap*, Journ. Phys. B., **33**, No 11 (2000)
- [31] T. Schätz, D. Habs, C. Podlech, J. Wei und U. Schramm, *Towards crystalline ion beams - the PALLAS ring trap*, In: Proc. Int. Conf. on „Trapped Charged Particles and Fundamental Physics“, Monterey, CA/USA, (1998), D. Dubin (Hrsg.), AIP Press (1999)
- [32] H.C. Naegerl, W. Bechter, J. Eschner, F. Schmidt-Kaler und R. Blatt, Appl. Phys. B, **66**, 603 (1998)
- [33] A. Melzer, *Laserwellen im Ionenteich*, Physik Journal Mai 2002, S. 22
- [34] Yu.E. Lozovik und O.L. Berman, *Phase transitions in a system of spatially separated electrons and holes*, JETP Letters **84**, 1027 (1997)
- [35] P.M. Platzman und M.I. Dykman, Science **284**, 1967 (1999)
- [36] Siehe z.B.: W. Demtröder, *Experimentalphysik 3, Atome Moleküle und Festkörper*, Springer-Verlag Berlin (1996), S. 161-162
- [37] N.J. Pulsford, *Der Wigner-Kristall, ein Festkörper aus Elektronen*, Phys. Bl. **48** (1992)
- [38] M. Bonitz, V. Golubnychij, A.V. Filinov, Yu.E. Lozovik, Microelectronic Engineering **63**, 141 (2002)
- [39] V. Golubnychij, Dissertation, Universität Rostock (2003)

Literatur

- [40] Referenzen und sehr schöne Animationen sind zu finden auf der Website von M. Bonitz: <http://elde.mpg.uni-rostock.de/mb>
- [41] T.P. Marlow, L.J. Cooper, D.D. Arnone, N.K. Patel, D.M. Whittaker, E.H. Linfield, D.A. Ritchie und M. Pepper, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2362 (1999)
- [42] B. Stroustrup, *Die C++ Programmiersprache*, Addison-Wesley, (2000), Kap. 22: Numerik
- [43] V. Golubnychi, P. Ludwig, A.V. Filinov und M. Bonitz, *Angular current control in mesoscopic electron and electron-hole bilayers*, Superlattices and Microstructures, zur Publikation eingereicht

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all jenen danken, die durch ihre fachliche und persönliche Unterstützung zum Gelingen dieser Diplomarbeit beigetragen haben:

- ☺ Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. Michael Bonitz für die Förderung und die damit verbundene Möglichkeit, mich mit diesem spannenden und vielseitigen Thema befassen zu können. Für die Anregungen, die das Entstehen dieser Arbeit und ihren Fortgang begleiteten, sowie für seine engagierte Betreuung möchte ich ihm ganz herzlich danken.
- ☺ Bedanken möchte ich mich bei allen meinen Kollegen für das freundliche und immer unterstützende Umfeld sowie für die vielen interessanten Gespräche. Ohne diese Kollegen hätte die Arbeit viel weniger Spaß gemacht.
- ☺ Eine großes Dankeschön geht an meine liebe Freundin Fanny Geisler für die schönen gemeinsamen Stunden nebenher und natürlich meine Familie, die mir dieses Studium durch ihre Unterstützung erst ermöglicht hat und auf deren Beistand ich mich immer verlassen konnte.

Erklärung

Ich erkläre, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel verwendet habe.

Rostock, 4. Dezember 2003

Patrick Ludwig