

Computersimulation für das Wachstum eines Quasikristalls

Bachelorarbeit aus der Physik

Vorgelegt von

Stefan Wolf

am 01.02.2019

Institut für Theoretische Physik I

Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg



Betreuer: Prof. Dr. Michael Schmiedeberg

Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe, dass alle Stellen der Arbeit, die wörtlich oder sinngemäß aus anderen Quellen übernommen wurden, als solche kenntlich gemacht sind und dass die Arbeit in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegt wurde.

Erlangen, den 31. Januar 2019

Zusammenfassung

Seit der Entdeckung von Quasikristallen vor über 30 Jahren sind noch viele Fragen ungeklärt. Ein großes Mysterium stellen dabei die Mechanismen dar, welche das Wachstum der quasiperiodischen Struktur verursachen. Die experimentelle Beobachtung eines mehrkomponentigen Quasikristalls lässt darauf schließen, dass die Möglichkeit zur Reparatur via Phasonenflips gegeben sein muss, damit ein fehlerfreier Quasikristall entsteht. Mit der Beobachtung der ersten simulierten einkomponentigen Quasikristalle eröffnet sich die Frage, ob dies auch für deren Wachstum essenziell ist.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Computerprogramm entwickelt, mit dessen Hilfe das Wachstum von einkomponentigen Quasikristallen auf atomarer Ebene ohne Phasonenflips simuliert werden soll. Dabei wurde eine spezielle Form der „importance sampling“-Monte-Carlo-Methode, der Metropolisalgorithmus, verwendet, mit dessen Hilfe über die Besetzung einzelner Gitterpositionen entschieden wird. Ausschlaggebend dafür ist die Energiedifferenz des Systems, welche die Positionierung eines Teilchens an jener Stelle mit sich bringt.

Um das Programm zu testen, wurden verschiedene periodische Gitter mit jeweils unterschiedlichen Temperaturen unter Verwendung eines Lennard-Jones-Potentials simuliert. Da hierbei ein physikalisch richtiges Wachstum beobachtet werden konnte, wurden im nächsten Schritt die Gittervektoren eines regulären Ikosaeders als Wachstumsrichtungen und ein oszillierendes Paarpotential für die Energieberechnung vorgegeben. Die so generierten Strukturen zeigten zwar ebenfalls das richtige Wachstumsverhalten bezüglich der Temperatur, allerdings ist das Wachstum durch die verwendeten Gittervektoren stark limitiert. Durch die gewonnenen Daten ist somit noch keine grundlegende Analyse des Wachstums eines einkomponentigen Quasikristalls möglich, doch bietet die Simulation ausreichend Verbesserungspotential, um den Ansatz weiterhin zu verfolgen.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Hintergrund	3
2.1	Der Quasikristall	3
2.2	Kristallwachstum	5
2.3	Bindungsenergie und Potentiale	6
2.4	Monte-Carlo-Simulation	8
3	Methode	11
3.1	Umsetzung der „importance sampling“- Monte-Carlo-Methode	11
3.2	Klassenstruktur	12
3.3	Positionsfindung	13
3.4	Programmablauf der Teilchenpositionierung	13
4	Ergebnisse	15
4.1	Periodische Gitter	15
4.1.1	Quadratisches und kubisches Gitter	15
4.1.2	Hexagonales Gitter	16
4.1.3	Dichteste Kugelpackung	17
4.2	Quasikristalle	21
5	Diskussion der Ergebnisse	28
5.1	Periodische Gitter	28
5.2	Ikosaedrische Gittervektoren	30
6	Zusammenfassung und Ausblick	33
	Literaturverzeichnis	36

1 Einleitung

Vor der Entdeckung der Quasikristalle schrieb man allen Kristallen eine besondere Eigenschaft zu, nämlich die Periodizität in allen drei Dimensionen: die Atome und Moleküle eines Kristalls sind so angeordnet, dass dieselbe Struktur, die sogenannte Einheitszelle, wiederholt auftritt. Im Jahr 1984 berichteten D. Shechtman et al. von der Existenz metallischer Festkörper, die neben zweifacher und dreifacher auch eine fünffache Rotationssymmetrie aufweisen und damit der ikosaedrischen Punktgruppe angehören [13]. Letzteres wurde bis dahin in noch keinem Kristall vorgefunden und bedeutet, dass das Gitter des Kristalls nicht translationsinvariant und somit nicht periodisch ist. Dennoch wiesen die betrachteten Feststoffe eine langreichweitige Ordnung auf. Bei den beobachteten metallischen Festkörpern handelte es sich um rasch abgekühltes Aluminium mit einem zehn- bis vierzehnprozentigen Anteil an Magnesium, Eisen oder Chrom. Die Entdeckung dieser Feststoffe, die seitdem als Quasikristalle bekannt sind, veranlasste die *Internationale Kristallographische Union* (IUCr) ihre Definition eines Kristalls, welche bisher die Periodizität als ausschlaggebende Eigenschaft beinhaltete, folgendermaßen zu ändern:

„A material is a crystal if it has essentially a sharp diffraction pattern.“ [5]

Seitdem wurden weitere Legierungen gefunden, die bei einer raschen Abkühlung die Charakteristik eines Quasikristalls aufweisen. Allerdings konnte man bisher nur einen natürlich vorkommenden Feststoff der Kategorie der Quasikristalle zuordnen. Dabei handelt es sich um das Mineral Ikosaedrit, das aus den drei Elementen Aluminium, Kupfer und Eisen besteht und in Russland gefunden wurde [2]. Bei allen bisher entdeckten Quasikristallen handelt es sich um Legierungen, d. h. sie bestehen aus mindestens zwei, im Regelfall drei Elementen.

Viele Fragen bezüglich der Quasikristalle bleiben bis heute offen. Ungeklärt ist unter anderem ob Quasikristalle bezüglich ihrer Energie oder ihrer Entropie stabilisiert werden. Eine Stabilisierung durch die Energie hätte zur Folge, dass ein quasiperiodischer Grundzustand existieren würde. Bei einer Stabilisierung durch die Entropie wäre dies nicht der Fall. Die Quasikristallstruktur würde in diesem Fall nur bei hohen Temperaturen auftreten [14]. Die Grundlage für die Stabilisierung ist auch eng mit dem Wachstum des Quasikristalls verknüpft. Bei einer energetisch bedingten Stabilisierung könnte das Wachstum des Quasikristalls eine perfekte Anordnung verhindern und somit Phasonenstörungen bewirken. Im Gegenzug kann das Wachstum des Quasikristalls elementar wichtig für eine Stabilität bezüglich der Entropie sein [6]. Nagao et al. konnten experimentell das Wachstum eines Al-Ni-Co-Quasikristalls beobachten und stellten dabei fest, dass während des Wachstumsprozesses kontinuierlich Fehlstellen geheilt wurden. Auf Grund dieser Beobachtung schlussfolgerten sie, dass die Reparatur durch Phasonenflips, und nicht lokale Wachstumsregeln, ausschlaggebend für eine perfekte Quasikristallstruktur ist [10].

Um das Wachstum eines Kristalls zu untersuchen greift man häufig auf Simulationen

zurück. Diese verwenden grundsätzlich die Monte-Carlo-Methode, da sich Simulationen basierend auf der molekularen Dynamik als ungeeignet erwiesen haben [7]. Die Modelle, welche der Simulationen des Wachstums von Quasikristallen zugrundeliegend, basieren grundsätzlich auf Kacheln oder auf Clustern [14].

Auch durch die erste Beobachtung eines ikosaedrischen einkomponentigen Quasikristalls in einer Simulation durch Engel et al. [3] eröffneten sich weitere Frage. Darunter fällt unter anderem auch ob die bisherigen Erkenntnisse über mehrkomponentige Quasikristalle auch für einkomponentige gelten.

Ziel dieser Arbeit ist es daher ein Werkzeug zur Simulation von einkomponentigen Quasikristallen zu erstellen. Das zugrundeliegende Modell basiert hierbei nicht auf Kacheln oder auf Cluster. Vielmehr sollen die einzelnen Atome mit Hilfe einer speziell angepassten Form der Monte-Carlo-Methode auf fest vorgegebenen Gitterplätze platziert werden. Bei dem hierfür verwendeten Potential soll es sich um das Potential handeln, mit dem es Engel et al. gelang, einen einkomponentigen Quasikristall zu simulieren. Dabei wird auf eine mögliche Dynamik der Teilchen verzichtet, sodass eine Heilung durch Phasonenflips nicht möglich ist. Die so simulierten Substrate können Aufschluss über die Bedeutung der Reparatur bei der Formierung quasiperiodischer einkomponentiger Systeme geben. Außerdem wäre es damit möglich festzustellen, ob eine quasiperiodische Grundstruktur existiert, d. h. ob die Stabilisierung über die Energie erfolgt.

2 Hintergrund

2.1 Der Quasikristall

Um die Struktur eines Kristalls zu analysieren, wird das Beugungsmuster, das meistens mit der Hilfe von Röntgenstrahlen gewonnen wird, herangezogen. Dieses besteht aus den Maxima der Intensitätsverteilung der gebeugten Strahlen. Diese sind ebenfalls in einem Gitter, dem sogenannten reziproken Gitter, angeordnet, welches durch eine Fouriertransformation der Paarkorrelationsfunktion des Kristallgitters, das durch die Anordnung der Teilchen bestimmt wird, gewonnen werden kann. Die Berechnungen in diesem Abschnitt folgen der Argumentation von Suck et al. [16].

Die Positionen der Maxima kann mit den drei Basisvektoren, die das reziproke Gitter aufspannen, beschrieben werden:

$$\mathbf{k} = \sum_{i=1}^3 h_i \mathbf{a}_i^*, h_i \in \mathbb{Z}$$

Quasikristalle besitzen im Gegensatz zu einem gewöhnlichen Kristall keine translationsinvarianz. Allerdings weisen sie ebenfalls Beugungsmaxima im Beugungsmuster auf, deren Positionen allerdings mit mehr als drei Vektoren beschrieben werden müssen (s. Abb. 1). Somit gilt für Kristalle allgemein:

$$\mathbf{k} = \sum_{i=1}^n h_i \mathbf{a}_i^*, h_i \in \mathbb{Z} \quad (1)$$

Ist $n > 3$, so liegt keine Periodizität im Kristallgitter vor und man spricht von Quasiperiodizität.

In einem Kristall gelten für periodische Eigenschaften wie der Teilchendichte $\rho(\mathbf{x})$

$$\rho(\mathbf{x}) = \rho(\mathbf{x} - \mathbf{a})$$

für jeden beliebigen Vektor $\mathbf{a} = n_1 \mathbf{a}_1 + n_2 \mathbf{a}_2 + n_3 \mathbf{a}_3$ mit den Basisvektoren des Gitters \mathbf{a}_i und $n_i \in \mathbb{Z}$. Es liegt dann Raumgruppensymmetrie vor und es existieren euklidische Transformationen $\{R|t\}$ sodass

$$\rho(\mathbf{x}) = \rho(R^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{t})).$$

Für die Fouriertransformation gilt somit

$$\hat{\rho}(\mathbf{k}) = \exp(-i\mathbf{k}\mathbf{t})\hat{\rho}(R\mathbf{k}). \quad (2)$$

Erfüllt eine euklidische Transformation des Gitters diese Bedingung, so gehört sie zur Raumgruppe des Systems.

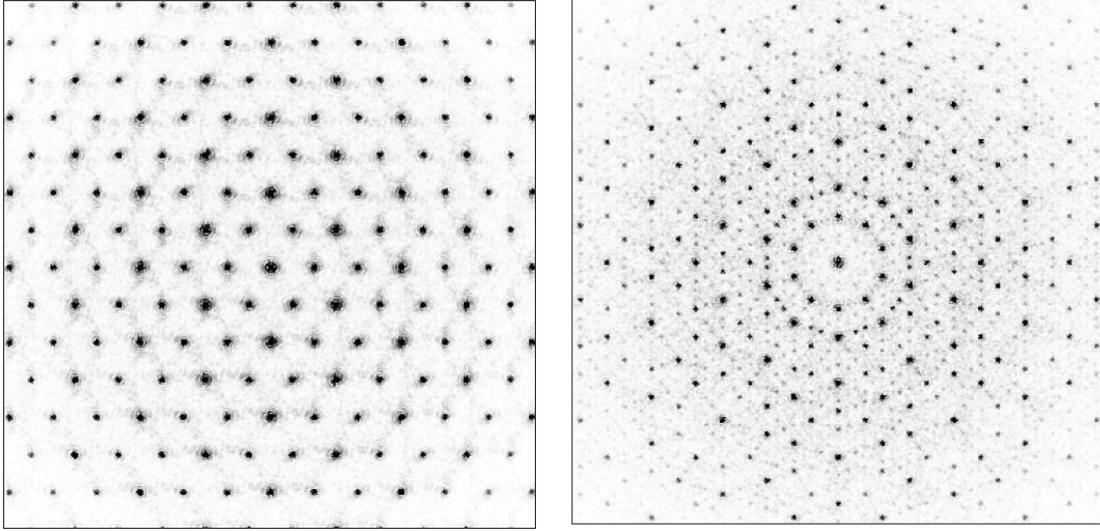


Abbildung 1: Das Beugungsmuster eines hP2-Kristalls (links) besitzt im Vergleich zu dem eines Quasikristalls mit ikosaedrischer Symmetrie (rechts) eine periodische Struktur. Bilder aus [3]

Bei einem Quasikristall sind Eigenschaften nicht durch periodische, sondern durch quasiperiodische Funktionen gegeben. Eine Funktion ist quasiperiodisch, wenn für jedes beliebige $\epsilon > 0$ eine Translation t existiert, sodass

$$|f(x) - f(x - t)| < \epsilon \quad \forall x \in \mathbb{R}$$

gilt. Wird eine periodische Funktion in n Dimensionen auf einen Unterraum beschränkt, so ist sie in diesem Unterraum quasiperiodisch. Die Vektoren \mathbf{a}_i^* aus (1) können als Projektion von n linear unabhängigen Vektoren betrachtet werden, welche ein n -dimensionales reziprokes Gitter aufspannen. Der Gittervektor \mathbf{k}_s dieses Gitters ist folglich durch eine Projektion $\hat{\pi}\mathbf{k}_s = \mathbf{k}$ gegeben. Für eine quasiperiodische Funktion $f(\mathbf{x})$ mit deren Fouriertransformation $\hat{f}(\mathbf{k})$ existiert somit eine gitterperiodische Funktion $f_s(\mathbf{x})$. Diese ist gegeben durch

$$f_s(\mathbf{x}_s) = \sum_{\mathbf{k}_s} \hat{f}(\hat{\pi}\mathbf{k}_s) \exp(i\mathbf{k}_s \mathbf{x}_s),$$

deren Beschränkung auf drei Dimensionen $f(\mathbf{x})$ entspricht. Für das n -dimensionale reziproke Gitter existiert ein zugehöriges n -dimensionales Gitter, dessen Punkte auf die Punkte des dreidimensionalen Raums projiziert werden können. Folglich kann der Quasikristall auf einen n -dimensionalen Raum projiziert werden und entspricht dort einem periodischen Gitter.

Diese Eigenschaft lässt sich für die Analyse der Raumsymmetrie eines Quasikristalls nutzen. Sei $\{R_s | \mathbf{t}_s\}$ ein Element der Raumgruppe im n -dimensionalen Raum, dann lässt es die eingebettete Funktion $f(\mathbf{x})$ invariant und es gilt

$$\hat{f}(\mathbf{k}) = \exp(i\mathbf{k}_s \mathbf{t}_s) \hat{f}(R\mathbf{k}).$$

Die Komponenten von \mathbf{k}_s lassen sich in physikalische und interne Komponenten \mathbf{k}_p und \mathbf{k}_I aufteilen, sodass sich als Bedingung der Raumsymmetrie für eine quasiperiodischen Funktion

$$\hat{f}(\mathbf{k}) = \exp(i\mathbf{k}_I \mathbf{t}_I) \exp(i\mathbf{k}_p \mathbf{t}_p) \hat{f}(R\mathbf{k}) \quad (3)$$

ergibt. Der Term $\exp(i\mathbf{k}_I \mathbf{t}_I)$ kann als eine zusätzliche interne Symmetrie interpretiert werden [16].

Einige Quasikristalle in drei Raumdimensionen weisen die Symmetrie eines Ikosaeders auf. Dieser hat sechs 5-fache, zehn 3-fache und fünfzehn 2-fache Drehachsen, fünfzehn Symmetrieebenen und ist zentralsymmetrisch. Die niedrigste Dimension, die der Raum besitzen muss, damit diese Quasikristalle darin projiziert werden können, ist sechs [15].

2.2 Kristallwachstum

Die Art und Weise, mit der ein Kristall wächst, ändert sich mit der Temperatur des Systems. Befindet sich das System nahe des thermischen Gleichgewichts, so erfolgt das Wachstum eines Kristalls bei einer niedrigen Temperatur Schicht für Schicht (Frank-van der Merwe-Wachstum). Das bedeutet, dass Gitterpositionen auf der nächsten Schicht erst besetzt werden, wenn die vorherige Schicht vollständig befüllt ist. Im Kontrast dazu erwartet man bei einer höheren Temperatur das gleichzeitige Wachstum in mehreren Schichten (Volmer-Weber-Wachstum). Der Übergang zwischen diesen beiden Arten des Wachstums erfolgt bei einer bestimmten Temperatur T_R und wird im englischen als „roughening transition“ bezeichnet. Bis zu dieser Temperatur ist die Oberfläche des Kristalls atomar glatt. Liegt die Temperatur allerdings über T_R , so wird die atomare Oberfläche zunehmend rauer. Zusätzlich zu diesen beiden Wachstumsmodi existiert noch ein dritter Modus, der zwischen diesen beiden liegt, nämlich der sogenannte Stranski-Krastanov-Wachstumsmodus. Bei diesem Wachstum erfolgt die Besetzung zunächst Schicht für Schicht, wechselt dann aber zum Volmer-Weber-Wachstum, sodass mehrere Schichten gleichzeitig besetzt werden (s. Abb. 2) [7].

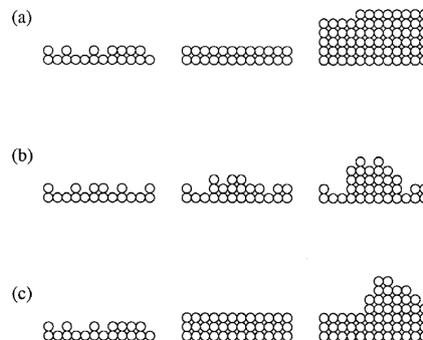


Abbildung 2: Wachstumsmodi: (a) Frank-van der Merwe, (b) Volmer-Weber, (c) Stranski-Krastanov. Grafik aus [7]

2.3 Bindungsenergie und Potentiale

Die Bindungsenergie eines Kristalls ist definiert als die Energie, die aufgebracht werden muss, um den Kristall in seine einzelnen Bestandteile zu zerlegen. Sie wird mit Hilfe des Potentials berechnet, das für die Wechselwirkung der Teilchen untereinander verantwortlich ist. Diese unterscheidet sich je nach Art der Bindung. Die einfachste Form der Wechselwirkung erfolgt aufgrund der Van-der-Waals-Kraft, die bei Edelgasatomen auftritt. Verursacht wird sie durch Dipole innerhalb der Atome, die aufgrund einer Verschiebung der Elektronenwolke relativ zum Kern entstehen und dafür verantwortlich sind, dass sich die Teilchen gegenseitig anziehen. Allerdings können sich die Atome nicht beliebig nahekommen. Die Wellenfunktionen der Elektronen auf den äußeren Schalen der Atome überlappen sich bei einem kurzen Abstand zueinander, das Pauli-Prinzip verbietet allerdings, dass zwei Elektronen denselben Zustands besetzen können, womit sie nicht in allen Quantenzahlen übereinstimmen können. Die Elektronen müssen deshalb auf höhere Energieniveaus ausweichen wodurch sich die Gesamtenergie des Kristalls erhöht. Dies spiegelt sich in einer starken Abstoßung der Atome wieder [4].

Zur Berechnung der Bindungsenergie einer Van-der-Waals-Bindung verwendet man das Lennard-Jones-Potential [4]

$$V(r) = \frac{A}{r^{12}} - \frac{B}{r^6}$$

Es besteht aus einem anziehenden Teil $\propto r^{-6}$ für die elektrische Anziehungskraft und einem abstoßen Teil $\propto r^{-12}$ für die abstoßende Kraft aufgrund des Pauli-Prinzips. Das Lennard-Jones-Potential kann in die Form

$$V(r) = 4\epsilon \left(\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right) \quad (4)$$

überführt werden. Der Parameter σ ist die Position der Nullstelle des Potentials, während der Parameter ϵ die Tiefe des Minimums bestimmt (s. Abb. 3). Selbiges liegt bei $r_0 = 2^{\frac{1}{6}}\sigma$. Die Werte der Parameter unterscheiden sich je nach Element [4].

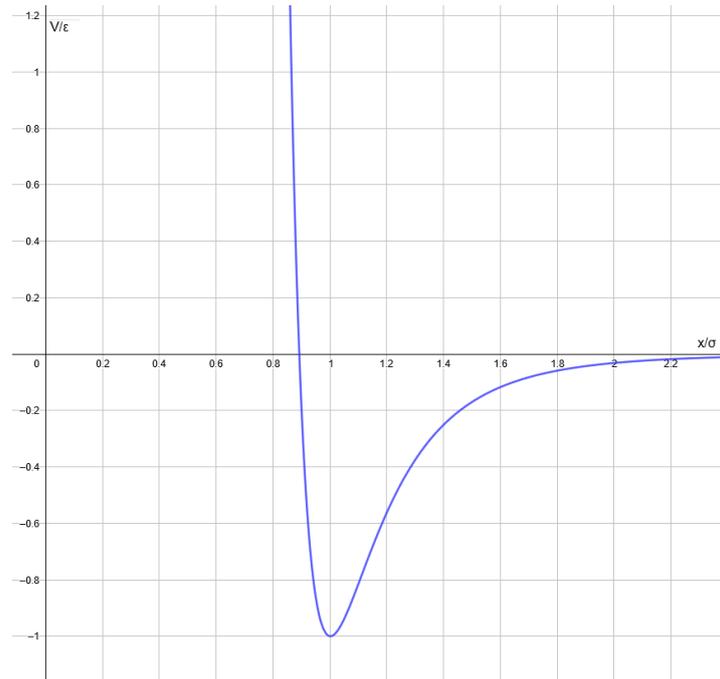


Abbildung 3: Lennard-Jones-Potential

Bei Metallen und Legierungen sind die Elektronen im Kristall delokalisiert, was zu einer ungerichteten Bindung im Kristall führt [4]. Aufgrund dessen unterscheidet sich das Wechselwirkungspotential für diese Bindung deutlich vom Lennard-Jones-Potential. Um das Paarpotential von Legierungen zu bestimmen, verwendeten Milhalkovič et al. ein oszillierendes Paarpotential als Ansatz, das sich schon bei Metallen bewährt hatte [9]:

$$V(r) = \frac{C_1}{r^{\eta_1}} + \frac{C_2}{r^{\eta_2}} \cos(kr + \phi) \quad (5)$$

Der Anteil $\propto \frac{1}{r^{\eta_2}} \cos(kr + \phi)$ ist dabei auf die Friedel-Oszillation zurückzuführen, die Auftritt, sobald Störungen in der Elektronendichte existieren [11].

Engel et al. konnten in einer Simulation ein selbstorganisiertes Wachstum eines ein-komponentigen Quasikristalls mit ikosaedrischer Symmetrie beobachten. Hierfür verwendeten sie eine abgewandelte Form des oszillierendes Paarpotentials und beschränkten es auf die ersten drei Potentialtöpfe (3w-OPP; s. Abb. 4)[3]:

$$V(r) = \frac{1}{r^{15}} + \frac{1}{r^3} \cos(k(r - 1.25) - \phi) \quad (6)$$

Für beide Potentiale ist die Bindungsenergie des Kristalls bzw. Quasikristalls gegeben durch

$$E_B = \sum_m^N \sum_{n, n \neq m}^N V(|x_m - x_n|), \quad (7)$$

wobei x_n die Position des n-ten Teilchens ist [4].

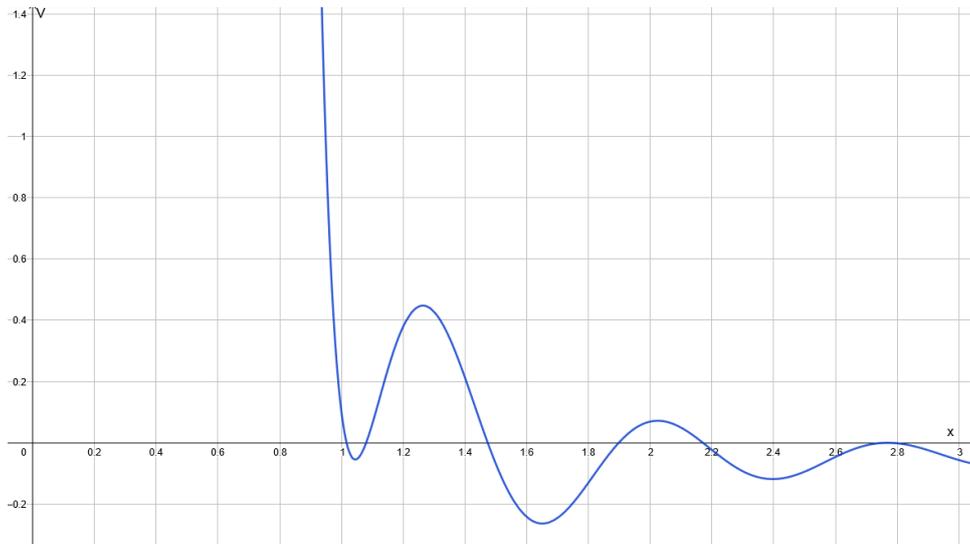


Abbildung 4: Oszillierende Paarpotential mit den Parametern $k = 8.5$ und $\phi = 0.47$, welches von Engel et al. verwendet wurde. Das Potential wurde so angepasst, dass es bei r_{max} eine Nullstelle hat.

2.4 Monte-Carlo-Simulation

Um ein statisches System von miteinander wechselwirkenden Teilchen, wie es bei einem Kristall der Fall ist, zu beschreiben, kann die statistische Physik herangezogen werden. Im Rahmen dieser werden nicht die mikroskopischen Größen des Systems, sondern die makroskopischen Größen betrachtet. Charakterisieren diese einen thermodynamischen Gleichgewichtszustand nennt man sie Zustandsgrößen [12]. Die Herleitung der Monte-Carlo-Methode in diesem Abschnitt richtet sich nach der Darstellung von Binder et al. [1].

Im Standardfall werden mit der Monte-Carlo-Simulation Systeme betrachtet, die eine feste Teilchenanzahl besitzen. Eine einzelne der vielen möglichen Anordnungen dieser Teilchen bezeichnet man als eine Konfiguration des Systems. Diese Konfigurationen besitzen unterschiedliche Energien, d. h. die Hamilton-Funktion \mathcal{H} dieser Anordnung fluktuiert um einen Mittelwert $\langle \mathcal{H} \rangle$. Systeme mit dieser Eigenschaft bezeichnet man als kanonisches Ensemble. Der Mittelwert einer beliebigen makroskopischen Größe ist im kanonischen Ensemble gegeben durch

$$\langle A(\mathbf{x}) \rangle = \int d\mathbf{x} p(\mathbf{x}) A(\mathbf{x}).$$

Dabei ist \mathbf{x} der Vektor aus dem Phasenraum, der alle Freiheitsgrade enthält, und somit für eine mögliche Konfiguration des Systems steht. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung $p(\mathbf{x})$ ist gegeben durch

$$p(\mathbf{x}) = \frac{1}{Z} \exp\left(-\frac{\mathcal{H}(\mathbf{x})}{k_B T}\right),$$

mit der Zustandssumme

$$Z = \frac{1}{h^{3N}N!} \int d\mathbf{x} \exp\left(-\frac{\mathcal{H}(\mathbf{x})}{k_B T}\right).$$

Hier ist h das Plancksche Wirkungsquantum, N die Anzahl der ununterscheidbaren Teilchen, k_B die Boltzmann-Konstante und T die Temperatur.

Der Mittelwert der Observable ist damit gegeben durch

$$\langle A(\mathbf{x}) \rangle = \frac{1}{Z} \frac{1}{h^{3N}N!} \int d\mathbf{x} \exp\left(-\frac{\mathcal{H}(\mathbf{x})}{k_B T}\right) A(\mathbf{x}). \quad (8)$$

Der Grundgedanke der Monte-Carlo-Methode ist es, nicht den kompletten Phasenraum zu betrachten, sondern nur eine ausgewählte Menge an Konfigurationen $\{\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \dots, \mathbf{x}_M\}$. Das Integral in der Zustandssumme Z wird durch eine Aufsummierung einer endlichen Anzahl an Konfigurationen ersetzt. Dadurch wird der Mittelwert zu

$$\overline{A(\mathbf{x})} = \frac{\sum_{n=1}^M \exp\left(\frac{-\mathcal{H}(\mathbf{x}_n)}{k_B T}\right) A(\mathbf{x}_n)}{\sum_{n=1}^M \exp\left(\frac{-\mathcal{H}(\mathbf{x}_n)}{k_B T}\right)}. \quad (9)$$

Für $M \rightarrow \infty$ muss diese Summe gegen (8) konvergieren. Die Methode, die durch (9) beschrieben wird, bezeichnet man als „simple samplin“ Monte-Carlo-Methode [1].

Die Konfigurationen $\{\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \dots, \mathbf{x}_M\}$ werden hierfür per Zufall gewählt. Diese Vorgehensweise hat sich allerdings gerade bei dicht gepackten Konfigurationen als problematisch erwiesen, da mit großer Wahrscheinlichkeit ein Zustand gewählt wird, bei dem $\exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right)$, mit der Gesamtenergie des Systems E bei dieser Konfiguration, sehr gering ist [8]. Dies kann umgangen werden, indem die Auswahl der Konfigurationen mit einer Wahrscheinlichkeit $P(\mathbf{x}_n)$ erfolgt. Daraus ergibt sich dann der Mittelwert

$$\overline{A(\mathbf{x})} = \frac{\sum_{n=1}^M \exp\left(\frac{-\mathcal{H}(\mathbf{x}_n)}{k_B T}\right) A(\mathbf{x}_n) / P(\mathbf{x}_n)}{\sum_{n=1}^M \exp\left(\frac{-\mathcal{H}(\mathbf{x}_n)}{k_B T}\right) / P(\mathbf{x}_n)}.$$

Es bietet sich an, $P(\mathbf{x}_n) \propto \exp\left(\frac{-\mathcal{H}(\mathbf{x}_n)}{k_B T}\right)$ zu wählen, da sich dann der Mittelwert der Observable zu

$$\overline{A(\mathbf{x})} = \frac{1}{M} \sum_{n=1}^M A(\mathbf{x}_n)$$

reduziert. Weiterhin können die Konfigurationen so gewählt werden, dass sie voneinander abhängig sind, d. h. die Konfiguration $\{\mathbf{x}_{n+1}\}$ wird mit Hilfe der vorherigen

Konfiguration $\{\mathbf{x}_n\}$ generiert. Die so gewählten Konfigurationen bilden dann eine sogenannte Markov-Kette. Die Monte-Carlo-Methode mit diesem Ansatz nennt man „importance sampling“-Monte-Carlo-Methode. Die Wahrscheinlichkeit, dass das System von Zustand $\{\mathbf{x}_n\}$ in Zustand $\{\mathbf{x}_{n+1}\}$ übergeht, bezeichnet man als Übergangswahrscheinlichkeit und muss so ausgewählt werden, dass sich für $M \rightarrow \infty$ die Auswahlwahrscheinlichkeit einer Konfiguration der kanonischen Verteilung im Gleichgewicht annähert:

$$P(\mathbf{x}_n) \rightarrow P_{GG}(\mathbf{x}_n) = \frac{1}{Z} \exp\left(-\frac{\mathcal{H}(\mathbf{x}_n)}{k_B T}\right)$$

Weiterhin soll die Wahrscheinlichkeit so gewählt werden, dass die Markov-Kette im detaillierten Gleichgewicht ist. Dies ist der Fall, wenn der Übergang des Systems vom Zustand $\{\mathbf{x}_n\}$ in den Zustand $\{\mathbf{x}_m\}$ reversibel bezüglich der Verteilung $P_{GG}(\mathbf{x}_n)$ ist. Sei $q(\mathbf{x}_n \rightarrow \mathbf{x}_m)$ die Übergangswahrscheinlichkeit, dann kann das Prinzip des detaillierten Gleichgewichts ausgedrückt werden durch

$$\begin{aligned} P_{GG}(\mathbf{x}_n)q(\mathbf{x}_n \rightarrow \mathbf{x}_m) &= P_{GG}(\mathbf{x}_m)q(\mathbf{x}_m \rightarrow \mathbf{x}_n) \\ \Rightarrow \frac{q(\mathbf{x}_n \rightarrow \mathbf{x}_m)}{q(\mathbf{x}_m \rightarrow \mathbf{x}_n)} &= \exp\left(-\frac{\Delta\mathcal{H}}{k_B T}\right). \end{aligned}$$

Daraus folgt, dass die Wahrscheinlichkeit für den Übergang von einer Konfiguration in die andere von der Differenz $\Delta\mathcal{H} = \mathcal{H}(\mathbf{x}_m) - \mathcal{H}(\mathbf{x}_n)$ abhängt. Sie wird dadurch allerdings nicht eindeutig festgelegt. Diese Methode, bei der die Auswahl der betrachteten Konfiguration gewichtet ist und dabei nur von der Energiedifferenz der beiden Konfigurationen abhängt, nennt man Metropolisalgorithmus.

3 Methode

Die Grundidee für die Simulation des Wachstums eines Kristalls bzw. Quasikristalls ist, ausgehend von bereits vorhandenen Teilchen neue freie Positionen zu bestimmen, über deren Besetzung dann mit Hilfe der „importance sampling“-Monte-Carlo-Methode entschieden wird. Als Startbedingung soll hierfür ein einzelnes Teilchen am Ursprung oder eine größere Anzahl an Teilchen (z. B. eine zweidimensionale Schicht) gewählt werden können. Die Wachstumsrichtung soll durch vorgegebene Gittervektoren bestimmt werden, von denen die Simulation nicht abweichen kann. Das Ergebnis der Simulation soll dann eine Liste aller gesetzten Teilchen sein, die neben den Indizes und Koordinaten auch die Indizes der direkten Nachbarn des Teilchens beinhaltet. Das so simulierte Wachstum stellt dabei stets eine Approximation des tatsächlichen Wachstums dar.

Um das Wachstum zu simulieren soll der Algorithmus in jedem Schritt eine neue Position bestimmen, auf der ein neues Teilchen gesetzt wird. Hierfür soll zunächst ein einzelnes Teilchen aus den bisher gesetzten Teilchen ausgewählt werden, von dem aus sich dann in Kombination mit einem der vorgegeben Gittervektoren die neue Position für die Besetzung ergeben soll. Jede freie Position soll mit einer Besetzungswahrscheinlichkeit belegt werden, die unter Berücksichtigung der potentiellen Energie an dieser Stelle und der Temperatur des Systems berechnet werden soll. Im Gegensatz zu anderen Monte-Carlo-Methoden soll allerdings nicht erst eine zufällige Position ausgewählt werden, über deren Besetzung dann mit Hilfe des Algorithmus entschieden wird. Vielmehr soll bereits die Auswahl der nächsten Position mit dem Monte-Carlo-Algorithmus durchgeführt und anschließend besetzt werden, ohne über die Besetzung erneut zu entscheiden. Es würden somit keine Fehlversuche bei der Besetzung einer Position auftreten, wodurch sich die Laufzeit verbessert. Diese spezielle Form des Metropolisalgorithmus nennt man auch BKL-Algorithmus nach seinen Entwicklern A.B. Bortz, M.H. Kalos und J.L. Lebowitz [7].

3.1 Umsetzung der „importance sampling“- Monte-Carlo-Methode

Für die Simulation wird angenommen, dass das System statisch ist und die Teilchen somit keine kinetische Energie besitzen. Die Hamilton-Funktion des Systems reduziert sich somit auf

$$\mathcal{H}(\mathbf{x}) = V(\mathbf{x})$$

Wie zuvor bereits erwähnt, ist die Energie des Kristalls und des Quasikristalls durch die Summierung der potentiellen Energien der einzelnen Teilchen gegeben (siehe (7)). Nachdem die Teilchen einmal gesetzt wurden, verbleiben sie auf dieser Position, so dass sich ihr Beitrag zur gesamten Energie des Kristalls nicht mehr ändert. Die Energiedifferenz, die beim Übergang zwischen zwei Konfigurationen entsteht, ist damit durch die potentielle Energie des Teilchens an der neu besetzten Position gegeben. Die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen zwei Konfigurationen kann daher mit einer Beset-

zungswahrscheinlichkeit für eine freie Position gleichgesetzt werden. Als Ausdruck der Besetzungswahrscheinlichkeit für eine freie Position $q(x)$ wurde

$$q(x) \propto \exp\left(-\frac{\sum_m V(|x_m - x|)}{k_B T}\right) \quad (10)$$

gewählt, wobei x_m die Positionen der bisher gesetzten Teilchen sind. Somit ist die Entscheidung über die Besetzung der Position nur von der Energiedifferenz der beiden Konfigurationen abhängig, sodass es sich bei dem hier verwendeten Algorithmus um einen Metropolisalgorithmus handelt. Die Besetzungswahrscheinlichkeit einer einzelnen Position ergibt sich durch die Division mit einem Normierungsfaktor τ_K . Dabei ist τ_K die Summe aller Besetzungswahrscheinlichkeiten der freien Position des Kristalls.

3.2 Klassenstruktur

Als Programmiersprache für die Simulation wurde C++ ausgewählt. Diese ist objektorientiert und ermöglicht so eine leichte Umsetzung der gewünschten Struktur für das Gitters, des Kristalls und der Teilchen. Es wurden drei Klasse definiert: „lattice“, „crystal“ und „atom“. Ein Objekt der Klasse „lattice“ beinhaltet alle Gittervektoren, die ausgehend von einem Teilchen im Prinzip zu erreichen sind. Wird ein neues Objekt der Klasse „atom“ erstellt, werden nicht nur der Index und die dreidimensionalen Koordinaten abgespeichert, sondern auch eine Liste über dessen möglichen Nachbarn angelegt. In dieser Nachbarliste werden die Indizes der direkten Nachbarn und, falls es dort noch kein Nachbarpartikel gibt, die Wahrscheinlichkeit für deren Besetzung gespeichert. Dabei ist auch die Position, an der diese Informationen gespeichert werden, entscheidend, denn sie korrespondiert direkt mit der Liste der Gittervektoren. Wird beispielsweise der Index eines Nachbars an i -ter Stelle gespeichert, so befindet sich das Nachbarpartikel an der Stelle, die sich aus der Position des Teilchens und des i -ten Gittervektors ergibt. Ein weiteres Attribut eines Teilchens ist die Gesamtbesetzungswahrscheinlichkeit τ_T seiner freien Positionen, die für die Auswahl neuer Position von Bedeutung ist. Alle einzelnen Teilchen werden in einem Objekt der Klasse „crystal“ gespeichert, die neben verschiedenen Klassenmethoden auch eine Liste aller gesetzten Teilchen enthält. Diese Teilchenliste stellt dann das gewünschte Ergebnis dar, das anschließend in der Konsole angezeigt oder als Textdatei gespeichert werden kann.

Für die Simulation des Wachstums von Kristallen wird das Lennard-Jones-Potential (4) mit den Parameter ϵ und σ verwendet. Um das Wachstum des Quasikristalls zu simulieren wird, hingegen das oszillierende Paarpotential (6) benutzt. Für die Parameter dieses Potentials, k und ϕ , wurden Werte gewählt, für die Engel et al. in der Lage waren, Formierungen von Quasikristallen zu beobachten [3].

Zu Beginn der Simulation werden die Parameter aus einer Textdatei eingelesen und ebenfalls im Objekt der Klasse „crystal“ abgelegt. Als weitere Parameter kann neben

einem Skalierungsfaktor für die Gittervektoren auch ein Radius für die Teilchen festgelegt werden, innerhalb dessen sich kein weiteres Teilchen befinden darf. Die Simulation behandelt diesen Bereich somit als wäre das Potential an diesen Stellen unendlich groß, sodass das Teilchen für diesen Bereich als harte Kugel angesehen werden kann. Dabei wird dieser Radius stets so gewählt, dass er maximal halb so groß ist, wie die Distanz zweier direkter Nachbarn, damit die Positionierung weiterer Teilchen überhaupt möglich ist.

3.3 Positionsfindung

Um eine freie Position zu bestimmen, wird zunächst ein Teilchen aus der Teilchenliste ausgewählt, dessen direkter Nachbar das neue Teilchen werden soll. Hierfür wird eine zufällige Zahl zwischen Null und Eins gezogen. Anschließend wird die Gesamtbesetzungswahrscheinlichkeit der einzelnen Teilchen τ_T durch die Gesamtbesetzungswahrscheinlichkeit des Kristalls τ_K dividiert und aufsummiert. Es wird dann das Teilchen ausgewählt, dessen Beitrag dafür verantwortlich ist, dass der Wert der Summe den Wert der zufälligen Zahl übersteigt. Um die Richtung ausgehend von diesem Teilchen zu bestimmen, wird erneut eine Zufallszahl zwischen Null und Eins bestimmt. Diesmal werden die Besetzungswahrscheinlichkeiten q der einzelnen Richtungen, in denen sich noch kein Teilchen befindet, durch die Gesamtbesetzungswahrscheinlichkeit des Teilchens τ_T normiert und aufsummiert, bis der Wert der zufälligen Zahl überschritten wird. Die so ermittelte freie Position ergibt sich dann aus der Summe der Position des ausgewählten Teilchens und des Gittervektors der ausgewählten Richtung.

3.4 Programmablauf der Teilchenpositionierung

Für die ermittelte freie Position wird ein neues Teilchen angelegt. Dem Teilchen wird die freie Position als Koordinaten übergeben und es wird eine Liste für dessen Nachbarn erstellt. Um festzustellen, ob die neuen möglichen Positionen, die sich aus der Position des neuen Teilchens und der einzelnen Gittervektoren zusammensetzen, bereits besetzt oder frei sind bzw. überhaupt besetzt werden können, werden sie mit der Teilchenliste abgeglichen.

Die hierfür erforderlichen Vergleiche würden mit zunehmendem Wachstum des Kristalls eine enorm große Laufzeit beanspruchen. Aus diesem Grund wird eine temporäre Liste aller Teilchen erstellt, die sich in der Nähe der Position des neuen Teilchens befinden. Die Abgleiche erfolgen dann nur mit Teilchen aus dieser temporären Liste, sodass die Berechnungsdauer deutlich reduziert wird.

Entspricht eine der neuen möglichen Positionen den Koordinaten eines anderen bereits gesetzten Teilchens, so wird an der entsprechenden Stelle der Nachbarliste der Index des Teilchens gespeichert. Der Verweis auf das neue Teilchen wird dabei ebenfalls beim Nachbar teilchen abgelegt, sodass beide Teilchen einen Querverweis auf das

jeweils andere besitzen. Ist die Position allerdings frei, so muss die Wahrscheinlichkeit für deren Besetzung q (siehe Gleichung (10)) ermittelt und als negative Zahl abgespeichert werden. Für Positionen, die nicht mehr zugänglich sind, wird eine Null abgelegt, sodass diese Positionen nicht in die Positionsfindung miteinbezogen werden.

Für die Berechnung der Besetzungswahrscheinlichkeit wird zunächst die Energiedifferenz, die eine Besetzung dieser Position bedeuten würde, berechnet. Die dazu erstellte Klassenfunktion erhält neben der Position auch die nahegelegenen Teilchen und ermittelt anschließend für jedes Teilchen die Distanz, die für die Berechnung der Energie erforderlich ist. Bei der Simulation des Wachstums mit einer periodischen Gitterstruktur werden nur die direkten Nachbarn in die Energieberechnung einbezogen. Da diese alle denselben Abstand zur neuen möglichen Position haben, kann das Lennard-Jones-Potential in diesem Fall als konstantes Potential angesehen werden. Um die Auswirkungen des oszillierenden Paarpotentials feststellen zu können, werden neben den direkten Nachbarn auch alle Teilchen, die sich innerhalb des maximalen Radius (Parameter r_{max}) befinden, in die Berechnung miteinbezogen.

Allerdings ist es möglich, dass diese Position nicht nur von einem Teilchen, sondern gleich von mehreren aus erreicht werden kann. Dies hätte zur Folge, dass sich die Besetzungswahrscheinlichkeit dieser Position vervielfacht, da sie bei mehreren Teilchen abgespeichert wird und so mehrfach in die Positionsfindung miteinbezogen werden würde. Aus diesem Grund wird die Anzahl der direkten Nachbarn dieser Position ermittelt und die berechnete Wahrscheinlichkeit mit dieser gewichtet.

Nachdem dies für jede mögliche Position erfolgt ist, wird die gesamte Besetzungswahrscheinlichkeit der freien Positionen des Teilchens τ_T und anschließend, die des Kristalls τ_K neu berechnet.

4 Ergebnisse

4.1 Periodische Gitter

Um das erstellte Programm für die Simulation des Wachstums eines Quasikristalls zu testen, wurden zunächst verschiedene zwei- und dreidimensionale periodische Gitter verwendet. Die Parameter für das Potential blieben dabei für die Simulationen mit unterschiedlichen Gitterstrukturen unverändert. Für diese Strukturen wurden die Werte $\frac{\epsilon}{k_B} = 100\text{K}$ und $\sigma = \frac{1}{\sqrt{2}} \approx 0.8909$ gewählt. Das Minimum des Potentials liegt somit bei einem Abstand von $r = 1$. Da nur Vektoren mit einer Länge von eins für die Gitter verwendet wurden gilt für jede mögliche freie Position

$$\frac{nV(r=1)}{k_B T} = -\frac{n\epsilon}{k_B T}$$

mit der Anzahl der Nachbarn n und der potentiellen Energie bei einem Nachbarn. Die einzelnen Gitter selbst wurden mit unterschiedlichen Temperaturen betrachtet.

4.1.1 Quadratisches und kubisches Gitter

Das vermutlich einfachste Gitter stellt das quadratische Gitter in zwei Dimensionen, gegeben durch die Vektoren $(1,0)$ und $(0,1)$, dar und ist damit das perfekte Gitter für einen ersten Test. Das Wachstum eines Kristalls mit diesem Gitter wurde, wie bei jedem anderen Gitter auch, mit einer niedrigen und einer hohen Temperatur simuliert.

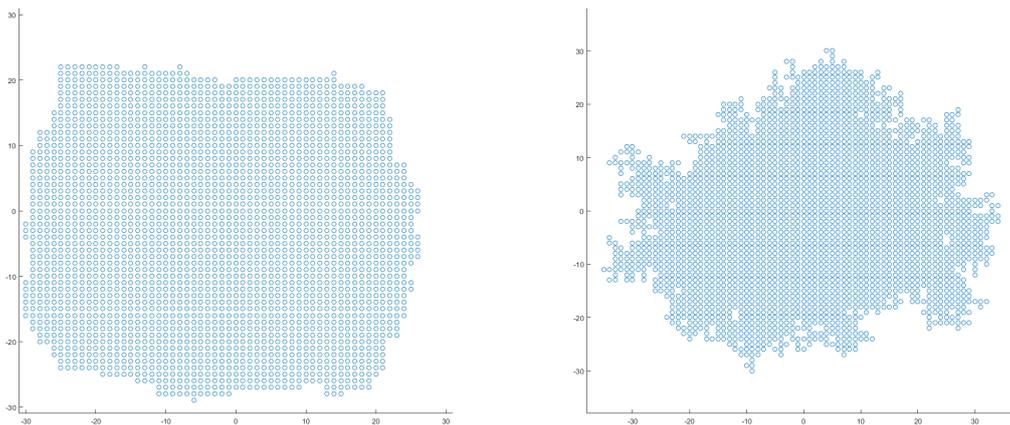


Abbildung 5: Simulation mit quadratischem Gitter (2500 Teilchen), links bei niedriger Temperatur ($\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.3$) und rechts bei hoher Temperatur ($\frac{k_B T}{\epsilon} = 30$).

Wie in Abbildung 5 zu erkennen ist wächst der Kristall bei einer niedrigen Temperatur symmetrisch in alle Richtungen. Während des Wachstums kann man beobachten, dass keine Positionen, die komplett von Nachbarn umgeben sind, frei bleiben und dass die

Besetzung neuer Position somit stets am Rand erfolgt. Die hohe Temperatur bewirkt hingegen ein ungleichmäßiges Wachstum und eine große Anzahl an freien Stellen. Anstelle eines geschlossenen Randes bilden sich kleine „Arme“ durch die Aneinanderreihung mehrerer Teilchen.

Dasselbe Verhalten kann auch im kubischen Gitter, das durch die Hinzunahme des Vektors $(0,0,1)$ entsteht, festgestellt werden (s. Abb. 6). Auch hier erfolgt bei niedriger Temperatur ein gleichmäßiges Wachstum in alle drei Dimensionen mit sehr wenigen Fehlstellen und einen rauen Rand bei höheren Temperaturen.

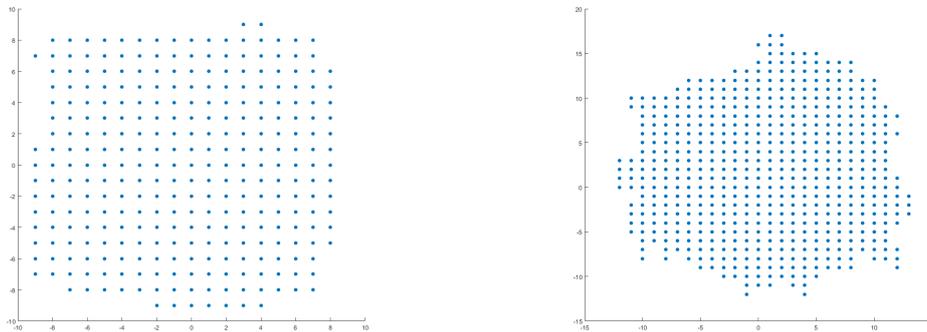


Abbildung 6: Simulation mit quadratischem Gitter in drei Dimensionen, links bei niedriger Temperatur ($\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.3$) und rechts bei hoher Temperatur ($\frac{k_B T}{\epsilon} = 30$). Die Teilchen wurden auf die x-y-Ebene projiziert.

4.1.2 Hexagonales Gitter

Für die Simulation mit einem zweidimensionalen hexagonalen Gitter wurden die Vektoren $(1,0,0)$, $(\frac{1}{2}, \frac{\sqrt{3}}{2}, 0)$ und $(\frac{1}{2}, -\frac{\sqrt{3}}{2}, 0)$ mit den jeweiligen inversen Vektoren verwendet. Die Simulation mit diesem Gitter wurde ebenfalls mit einer niedrigen und einer hohen Temperatur durchgeführt (s. Abb. 7).

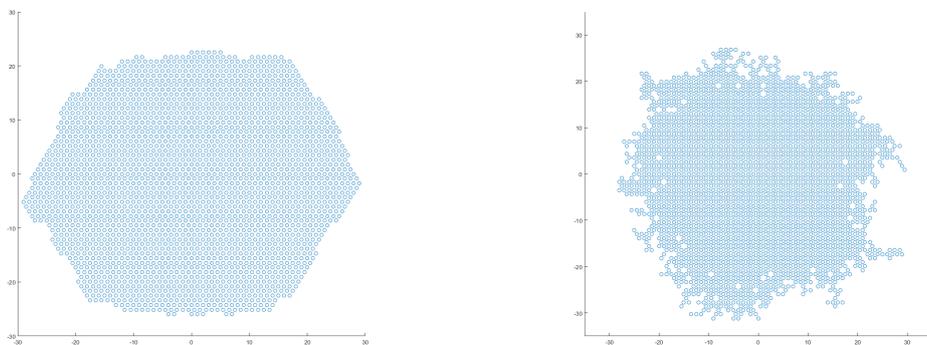


Abbildung 7: Simulation mit einem hexagonalen Gitter (2500 Teilchen), links bei niedriger Temperatur ($\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.3$) und rechts bei hoher Temperatur ($\frac{k_B T}{\epsilon} = 30$).

Wie schon zuvor beim quadratischen Gitter kann bei einer niedrigen Temperatur ein gleichmäßiges Wachstum ohne jegliche freien Stellen beobachtet werden. Bei einer höheren Temperatur bilden sich wie im quadratischen Fall „Arme“, die diesmal allerdings länger ausfallen, womit sich auch hier kein scharf abgegrenzter Rand bildet.

4.1.3 Dichteste Kugelpackung

Legt man das zweidimensionale hexagonale Gitter in Schichten verschoben übereinander, so erhält man je nach Anordnung der Schichten ein kubisch flächenzentriertes Gitter (fcc) oder eine hexagonale dichte Kugelpackung (hcp). Die hcp-Struktur entsteht, wenn die dritte Schicht direkt über der ersten Schicht liegt, also wenn die Schichten im Muster AB AB angeordnet sind. Für das fcc-Gitter muss jede dritte Schicht übereinander liegen, also im Muster ABC ABC angeordnet sein. Um die Formation dieser Strukturen zu simulieren müssen dem Programm neben den Vektoren für das zweidimensionale hexagonale Gitter weitere Vektoren übergeben werden, nämlich $(0, \frac{\sqrt{3}}{3}, \sqrt{\frac{2}{3}})$, $(-\frac{1}{2}, -\frac{\sqrt{3}}{6}, \sqrt{\frac{2}{3}})$, $(\frac{1}{2}, -\frac{\sqrt{3}}{6}, \sqrt{\frac{2}{3}})$ und deren Inversen. Dies bewirkt, dass das Gitter der zweiten Schicht um den Faktor $\frac{\sqrt{3}}{3}$ in y-Richtung verschoben ist. Allerdings soll auch eine Verschiebung in negativer y-Richtung möglich sein, sodass auch die Vektoren $(0, -\frac{\sqrt{3}}{3}, \sqrt{\frac{2}{3}})$, $(-\frac{1}{2}, \frac{\sqrt{3}}{6}, \sqrt{\frac{2}{3}})$, $(\frac{1}{2}, \frac{\sqrt{3}}{6}, \sqrt{\frac{2}{3}})$ und deren inversen Vektoren übergeben werden. Jedes Teilchen ist nun in der Lage 18 direkte Nachbarn zu haben. Damit dennoch eine zweidimensionale hexagonale Struktur in den einzelnen Schichten entstehen können werden die möglichen Positionen durch den Parameter, der den Radius der Teilchen bestimmt, eingeschränkt. Der Radius wurde auf den Wert 0.495 gesetzt, sodass, nachdem beispielsweise die Position $(0, \frac{\sqrt{3}}{3}, \sqrt{\frac{2}{3}})$ besetzt wurde, eine Besetzung der Position $(\frac{1}{2}, \frac{\sqrt{3}}{6}, \sqrt{\frac{2}{3}})$ nicht mehr möglich ist.

Die Simulation wurde für dieses Gitter auf eine Box mit einer Seitenlänge von 60 in x- und y-Richtung und einer Höhe von 3 beschränkt. Dadurch werden auch energetisch ungünstigere Positionen besetzt, sobald die Anzahl der günstigen Position erschöpft ist, ohne dabei die Teilchenanzahl und damit die Simulationsdauer enorm erhöhen zu müssen.

Zunächst wurde die Simulation von einem einzelnen Teilchen ausgehend bei einer niedrigen und anschließend bei einer höheren Temperatur gestartet. Wie in Abbildung 8 zu erkennen ist, ist bei zwei Simulationen mit derselben Temperatur ein perfekter Kristall ohne Fehlstellen gewachsen. Links ist die dritte Schicht (in blau dargestellt) direkt über der Grundschicht (in schwarz dargestellt) gewachsen während die mittlere Schicht (in rot dargestellt) verschoben ist, womit eine hcp-Struktur entstanden ist. Rechts ist nicht nur die mittlere Schicht, sondern auch die dritte Schicht verschoben, wodurch sich eine fcc-Struktur gebildet hat.

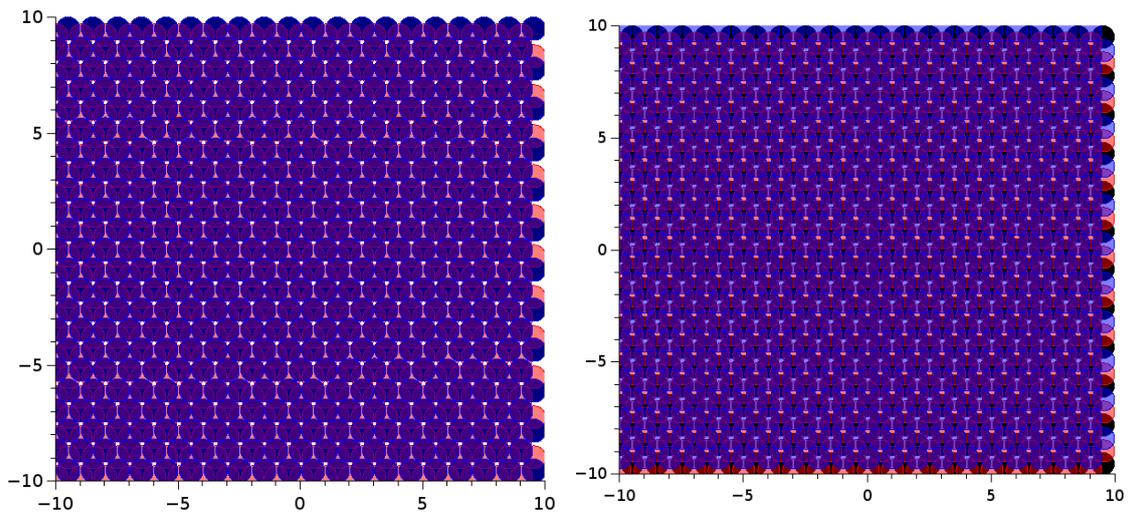


Abbildung 8: Simulation mit Hilfe der dreidimensionalen Gittervektoren und mit $\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.3$. Die erste Schicht ist in schwarz, die zweite in rot und die dritte in blau dargestellt. Links ist eine hcp-Struktur entstanden (ABA), rechts eine fcc-Struktur (ABC).

Bei der Besetzung der Gitterpositionen wurden stets Positionen gewählt, die mehr als einen Nachbar besitzen, wodurch ein gleichmäßiges Wachstum stattfand. Dies wird auch am Rand des Substrats deutlich, der sehr scharf abgegrenzt ist (s. Abb. 9).

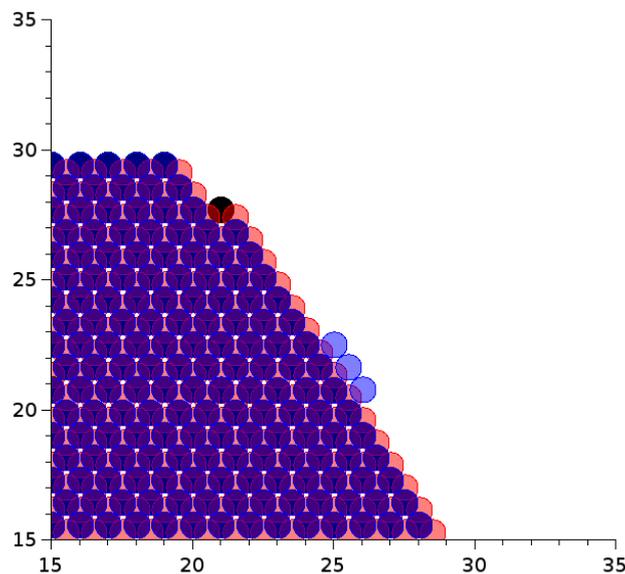


Abbildung 9: Rand des simulierten Kristalls bei einer Simulation mit $\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.3$

Bei einer leichten Erhöhung der Temperatur wächst der Kristall weiterhin gleichmäßig, allerdings weist er dann nicht mehr ausschließlich eine der beiden genannten Strukturen auf.

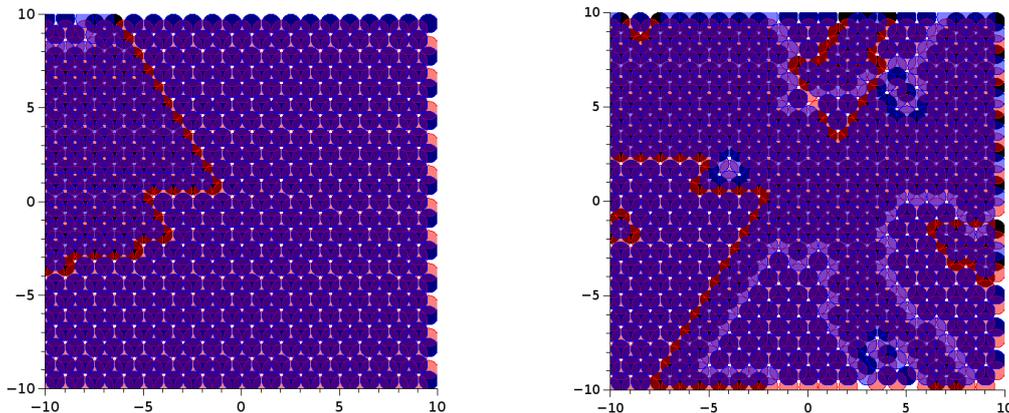


Abbildung 10: Vergleich der mit $\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.6$ (links) und $\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.9$ (rechts) simulierten Kristallen.

In Abbildung 10 ist ersichtlich, dass bei $\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.6$ das Grundgitter und die zweite Schicht fast fehlerfrei gewachsen sind. In der dritten Schicht haben sich allerdings zwei Regionen gebildet. Der Bereich $x=[-10,-5]$, $y=[0,10]$ weist ein fcc-Gitter auf, während im anderen Bereich eine hcp-Struktur beobachtet werden kann. Bei einer weiteren Erhöhung der Temperatur auf $\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.9$ können nicht nur mehrere Regionen, die eine der beiden Strukturen aufzeigen, festgestellt werden, sondern auch Fehlstellungen innerhalb der Grundschicht. Diese machen sich als Kanten zwischen den einzelnen Regionen bemerkbar. Beachtlich ist allerdings, dass bei beiden Temperaturen die mittlere Schicht fast fehlerfrei gewachsen ist.

Auch bei $\frac{k_B T}{\epsilon} = 5$ gibt es noch vereinzelt Regionen, die eine der beiden Strukturen (fcc oder hcp) aufweisen. Allerdings wird die simulierte Struktur deutlich von Fehlstellungen dominiert, wie in Abbildung 11 ersichtlich ist. Es gibt nun nicht nur Brüche in der ersten und dritten Schicht, sondern auch in der mittleren Schicht, die bei einer niedrigen Temperatur hingegen fehlerfrei wächst.

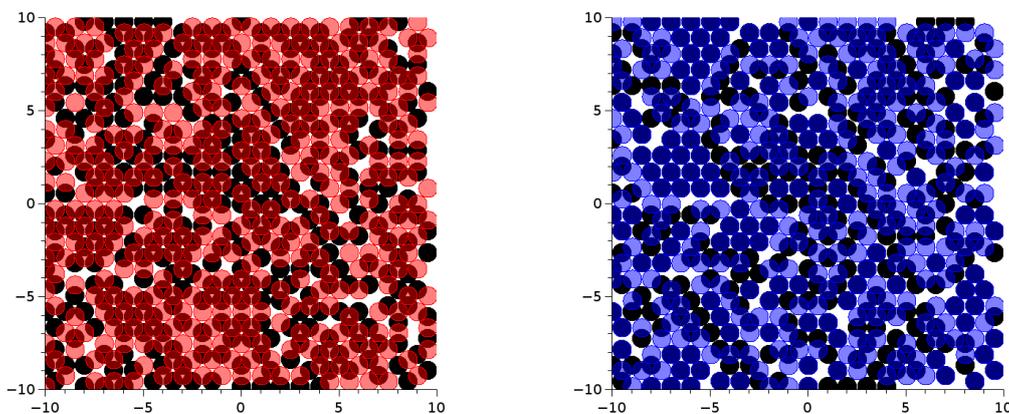


Abbildung 11: Simulation mit $\frac{k_B T}{\epsilon} = 5$. Links werden nur die erste und die mittlere Schicht dargestellt, rechts die erste und die dritte.

Ergebnisse

Ausgehend von einer vollständig besetzten Grundsicht kann ein anderes Verhalten des Wachstums festgestellt werden. Der Simulation wird dafür als Grundsicht ein perfektes zweidimensionale hexagonale Gitter als Startbedingung übergeben. Bereits bei $\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.3$ kann hierbei eine geringe Anzahl an Brüchen in der mittleren und oberen Schicht beobachtet werden (s. Abb. 12).

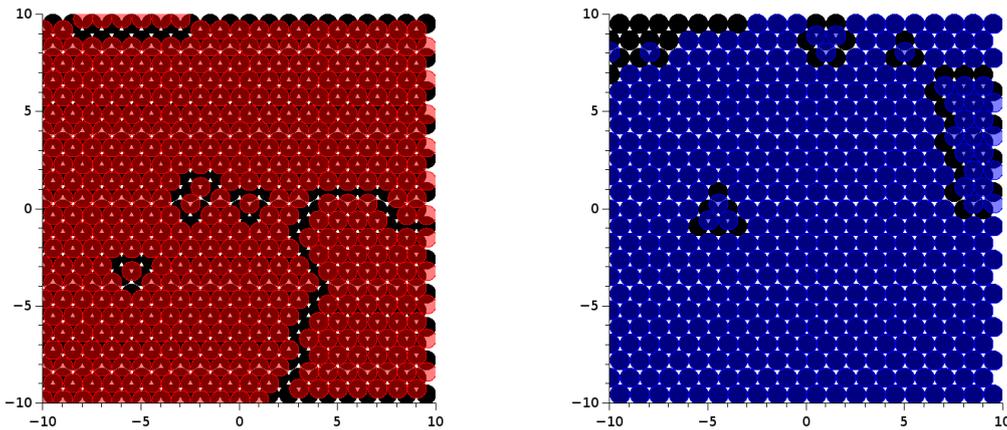


Abbildung 12: Simulation ausgehend von einer perfekten Grundsicht und $\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.3$. Links wird die Grund- und mittlere Schicht, rechts die Grund- und obere Schicht dargestellt.

Die Anzahl an Teilchenpositionierungen, die ein fehlerfreies Wachstum verhindern, steigt dabei mit Zunahme der Temperatur an. Vergleicht man die Besetzung der dritten Schicht bei $\frac{k_B T}{\epsilon} = 5$ mit unterschiedlichen Startbedingungen stellt man bei beiden eine große Anzahl an Kanten fest. Allerdings bestehen die einzelnen Cluster (Teilchen, die derselben Struktur angehören) bei einem freien Wachstum aus mehr Teilchen als es beim Wachstum ausgehend von einer Grundsicht der Fall ist (s. Abb. 13).

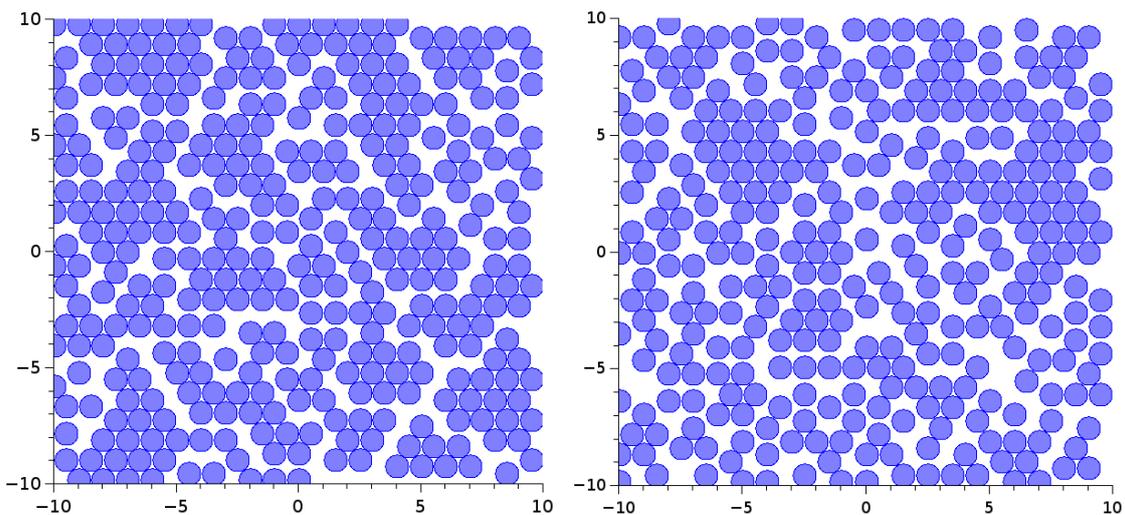


Abbildung 13: Simulation mit $\frac{k_B T}{\epsilon} = 5$ mit unterschiedlichen Startbedingungen: links nur ein Teilchen, rechts mit einer perfekten Grundsicht.

Als weiteren Test kann man nun die 18 Vektoren dieser Struktur drehen und ein quadratisches Gitter als Grundschicht vorgeben. In diesem Fall müsste immer ein Kristall mit fcc-Gitter wachsen, da nur in diesem das quadratische Grundgitter auftritt. Das Koordinatensystem wurde dafür um $\alpha = -54.74^\circ$ um die x-Achse gedreht. Die Drehmatrix R ist dann gegeben durch

$$R = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\alpha) & -\sin(\alpha) \\ 0 & \sin(\alpha) & \cos(\alpha) \end{pmatrix}$$

und die neuen Vektoren durch

$$e_i^* = Re_i.$$

Der Simulation werden damit weiterhin alle 18 Wachstumsrichtungen ermöglicht.

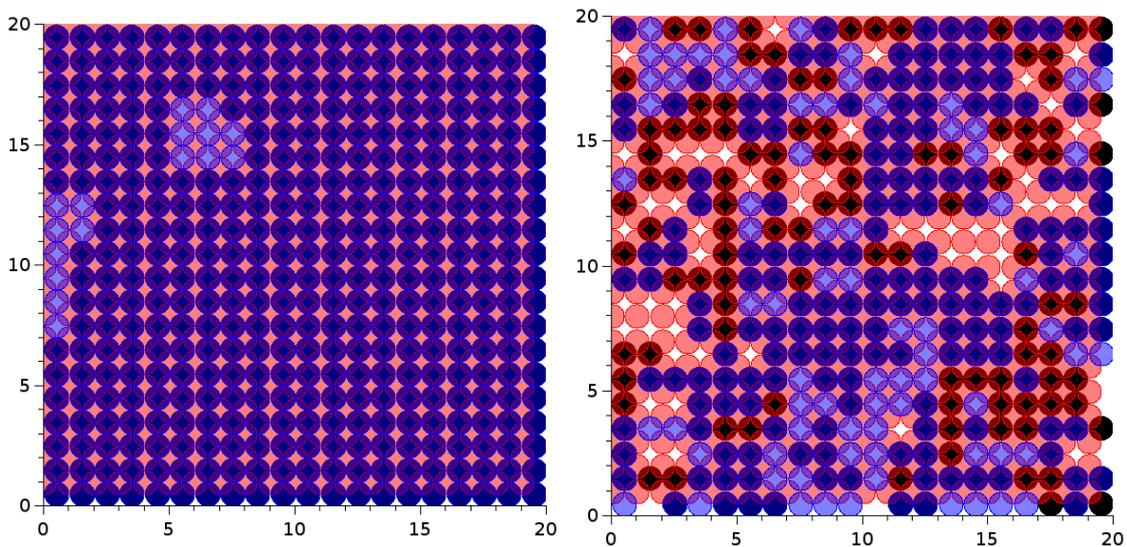


Abbildung 14: Simulation mit gedrehten Vektoren und einem quadratischen Grundgitter mit $\frac{k_B T}{\epsilon} = 0.3$ (links) und $\frac{k_B T}{\epsilon} = 2$ (rechts).

Bei einer niedrigen Temperatur entsteht wie erwartet ein annähernd perfekter fcc-Kristall. Wird das Wachstum hingegen mit einer höheren Temperatur simuliert, ist die Entwicklung von Fehlstellen möglich, die bewirken, dass die Positionen für das fcc-Gitter nicht mehr zugänglich sind (s. Abb. 12).

4.2 Quasikristalle

Für die Simulation des Wachstums eines Quasikristalls wurde die Struktur eines regulären Ikosaeders als Basis gewählt und für die Berechnung der Gittervektoren verwendet. Um eine symmetrische Struktur zu erhalten, wird in der Mitte des Ikosaeders ein Teilchen platziert, von dem aus alle 12 Ecken erreicht werden können. Diese Vektoren

haben eine Länge von $r_{iko} = \frac{1}{4} \sqrt{10 + 2\sqrt{5}}$ damit ein Ikosaeder mit der Kantenlänge von 1 entsteht. Die Länge r_{iko} entspricht dem Kantenkugelradius des Ikosaeders. Die Vektoren sind dann durch

$$\begin{aligned} a_1 &= (0, 0, r), \\ a_2 &= \left(0, \sqrt{\frac{1 + \sqrt{5}/5}{2}}, \frac{1}{2} \sqrt{\frac{1 + \sqrt{5}/5}{2}} \right), \\ a_{3/4} &= \left(\pm \frac{\tau}{2}, \sqrt{\frac{1}{8} \left(1 - \frac{\sqrt{5}}{5} \right)}, \frac{1}{2} \sqrt{\frac{1 + \sqrt{5}/5}{2}} \right) \\ a_{5/6} &= \left(\pm \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \sqrt{1 + 2\frac{\sqrt{5}}{5}}, \frac{1}{2} \sqrt{\frac{1 + \sqrt{5}/5}{2}} \right) \end{aligned}$$

inklusive ihrer Inversen gegeben. Dabei ist $\tau = \frac{(1+\sqrt{5})}{2}$ die goldene Zahl. Die Teilchen in einem vollständig besetzten Ikosaeder inklusive des Teilchens im Zentrum haben somit die Abstände von r_{iko} , 1, τ und $2r_{iko}$ zueinander.

Für die Simulation wurde das Potential (6) verwendet. Die Parameter wurden auf dieselben Werte gesetzt, mit denen auch Engel et al. in ihrer Simulation die Formation eines Quasikristalls beobachten konnten. Diese sind $k = 8.5$ und $\phi = 0.47$ [3]. Das Potential wurde axial verschoben, sodass das dritte Maximum bei $r_{max} = 2.769$ eine Nullstelle des Potentials ist. Zusätzlich wird die berechnete Energie mit einem Multiplikator M vervielfacht, um Energiewerte zu erhalten, die sich ausreichend voneinander unterscheiden und damit eine Betrachtung verschiedener Temperaturen ermöglicht wird. Dabei wurde der Wert so gewählt, dass $\frac{k_B}{M} = \frac{1}{500} \text{K}^{-1}$.

Bei der Simulation mit periodischen Gittern wurden bisher nur die direkten Nachbarn, die über die vorgegebenen Vektoren erreicht werden können, für die Energieberechnung berücksichtigt. Um die Auswirkung der Verwendung des o. g. Potentials untersuchen zu können, wurde der Algorithmus abgeändert damit alle Teilchen, die sich innerhalb eines Radius von r_{max} befinden, mit in die Energieberechnung einbezogen werden. Dies hat zur Folge, dass auch die Besetzungswahrscheinlichkeit der freien Positionen der Teilchen, die sich in dieser Umgebung befinden aber nicht über einen der Gittervektoren direkt erreicht werden können, aktualisiert werden müssen. Bisher haben sich diese nur verändert, wenn diese Position vom neu gesetzten Teilchen aus ebenfalls erreicht werden kann. Diese Änderung des Algorithmus hat eine deutliche Erhöhung der Laufzeit zur Folge.

Die Simulation wurde ausgehend von einem einzelnen Teilchen im Ursprung gestartet und ist dabei nicht auf eine Simulationsbox beschränkt. Bei einer niedrigen Temperatur findet - wie bei den periodischen Strukturen - ein gleichmäßiges Wachstum statt (s. Abb. 15). Die Oberfläche ist dabei annähernd kugelförmig. Ansätze für eine

Formierung eines Ikosaeders kann auch abseits vom Zentrum beobachtet werden, ist allerdings nie komplett vollständig. Dies wird augenscheinlich durch Teilchen verhindert, die zuvor positioniert wurden.

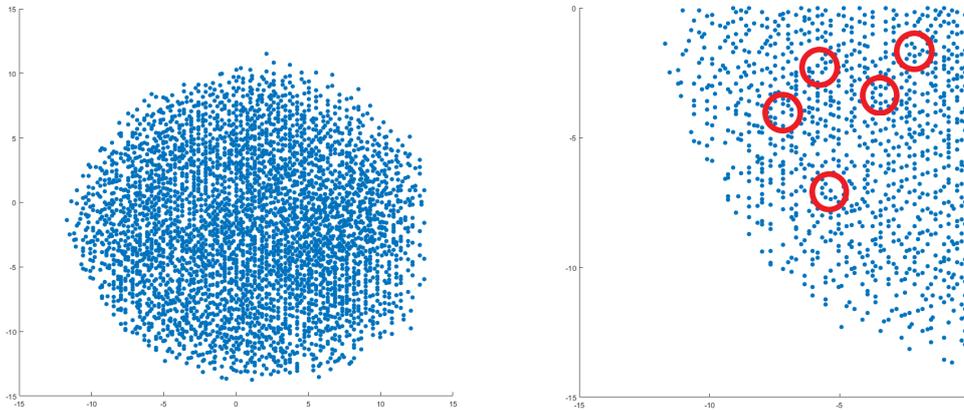


Abbildung 15: Simulation mit den Gittervektoren des Ikosaeders und mit $\frac{k_B T}{M} = \frac{3}{50}$. Die Teilchen wurden auf die x-y-Ebene projiziert. Links ist das gesamte Substrat zu sehen, rechts ein Ausschnitt des Substrats. Dabei sind die Ansätze der Formierungen einzelner Ikosaeder markiert.

Eine Erhöhung der Temperatur hat wie zuvor bei einem periodischen Gitter ein unregelmäßiges Wachstum zur Folge. Dies wird an den Abweichungen von einer kugelförmigen Oberfläche deutlich. Auch die Formierung von Ikosaedern außerhalb des Zentrums wird unterdrückt (s. Abb. 16).

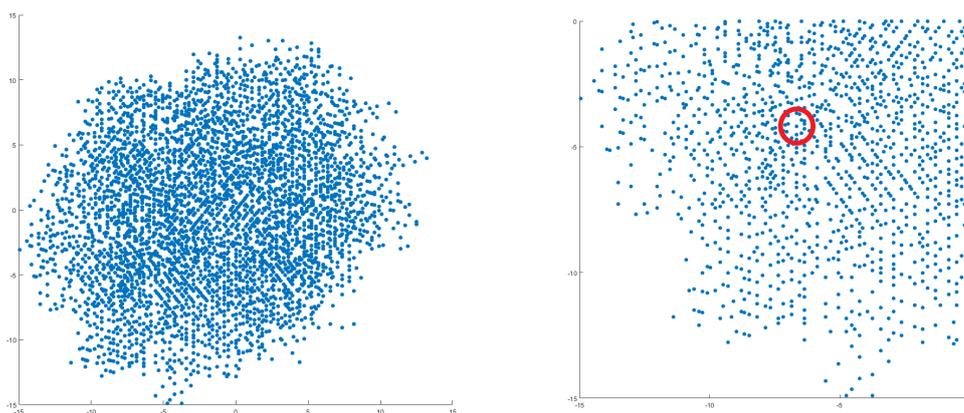


Abbildung 16: Simulation mit den Gittervektoren des Ikosaeders und mit $\frac{k_B T}{M} = 6$

Bemerkenswert ist dabei, dass die Teilchendichte bei einer hohen Temperatur größer ist, als es bei einer niedrigen Temperatur der Fall ist (s. Abb. 17).

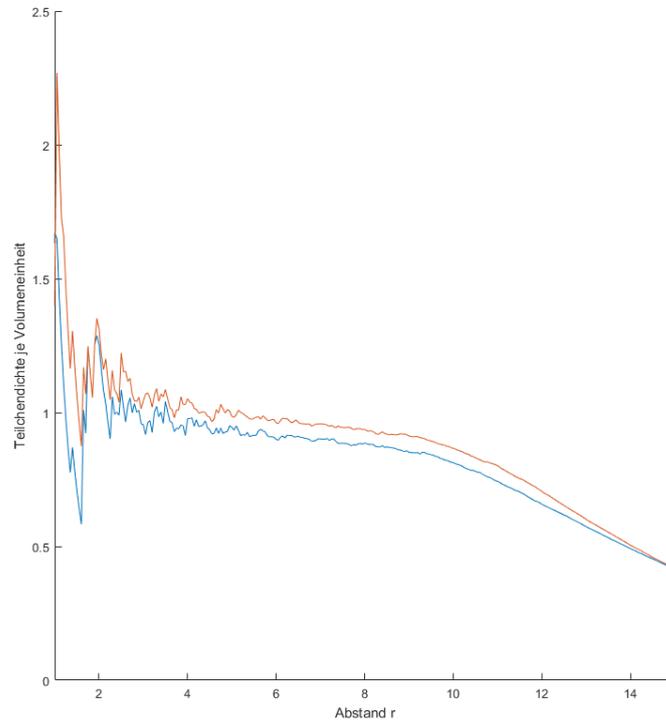


Abbildung 17: Teilchendichte der simulierten Substrate: $\frac{k_B T}{M} = \frac{3}{50}$ in blau, $\frac{k_B T}{M} = 6$ in orange.

Die Beugungsmuster der orthogonalen Projektionen auf die x-y-Ebene zeigen bei beiden Simulationen die 10-fache Rotationssymmetrie. Wie in Abbildung 18 zu erkennen ist, sind allerdings die Maxima bei $\frac{k_B T}{M} = \frac{3}{50}$ im mittleren Ring im Gegensatz zu den Maxima bei $\frac{k_B T}{M} = 6$ minimal schärfer abgegrenzt.

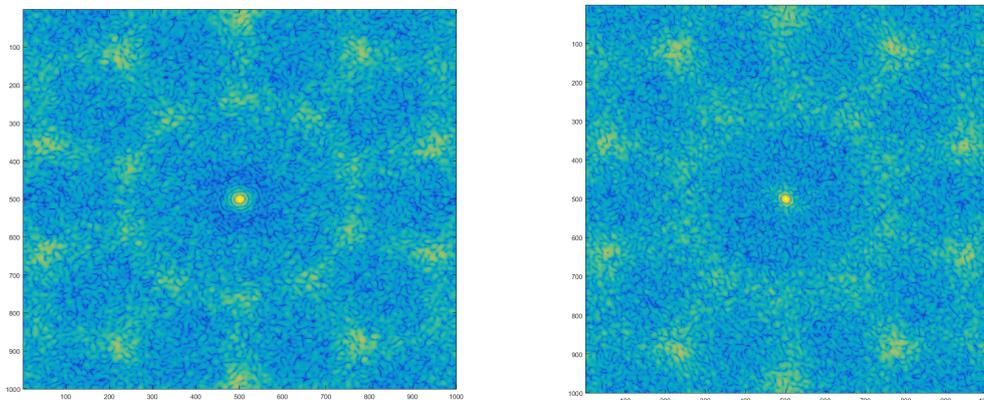


Abbildung 18: Beugungsmuster der Substrate bei $\frac{k_B T}{M} = \frac{3}{50}$ (links) und bei $\frac{k_B T}{M} = 6$ (rechts).

Um festzustellen, ob die genannte Symmetrie auch in anderen Ebenen gegeben ist, wird das System um $\alpha = 31.717^\circ$ um die x-Achse und um $\beta = 58.2812^\circ$ um die y-Achse mit Hilfe einer Drehmatrix gedreht und anschließend wieder auf die x-y-Ebene projiziert. Durch diese Drehung befindet sich wieder eins der im Ikosaeder auftretenden Fünfecke parallel zu x-y-Ebene. Wie in Abbildung 18 zu sehen ist, hat dies keine Auswirkungen auf das Beugungsmuster des Substrats.

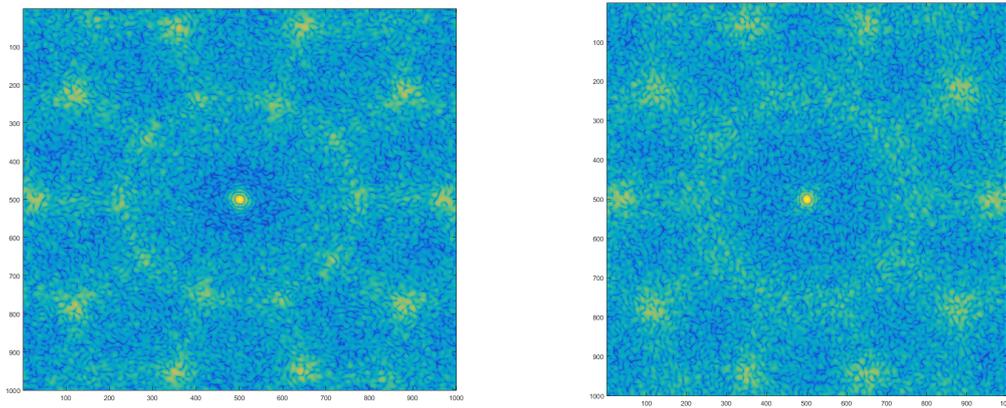


Abbildung 19: Beugungsmuster der gedrehten Substrate mit $\frac{k_B T}{M} = \frac{3}{50}$ (links) und mit $\frac{k_B T}{M} = 6$ (rechts).

Neben dem Potential (6) wurde auch eine andere Variante des Potentials (5) mit verschiedenen Temperaturen getestet:

$$V(r) = \frac{1}{r^{15}} + \frac{1}{r^3} \cos(8r - 0.25) \quad (11)$$

Das Potential wurde dabei axial wie schon zuvor solchermaßen verschoben, dass das dritte Maximum eine Nullstelle des Potentials ist. Zusätzlich wurde es in x-Richtung soweit verschoben, bis das Minimum des Potentials im ersten Potentialtopf bei $r = r_{iko} = \frac{1}{4} \sqrt{10 + 2\sqrt{5}}$ lag. Das hat zur Folge, dass auch die anderen auftretenden Abstände 1 , τ und $2r_{iko}$ nun in den Potentialtöpfen liegen (s. Abb. 20).

Bei dem so simulierten Substrat handelt es sich nicht um einen Quasikristall. Es nimmt stattdessen die Form einer Schneeflocke an (s. Abb. 21). Neben dem Zentrum, dass in der Umgebung des Ursprungs lokalisiert ist, kann kein weiteres Zentrum entstehen. Aufgrund dieser perfekten Anordnung zeigt auch das Beugungsmuster dieser Struktur scharf abgegrenzte Maxima und eine perfekte 10-fache Symmetrie.

Ergebnisse

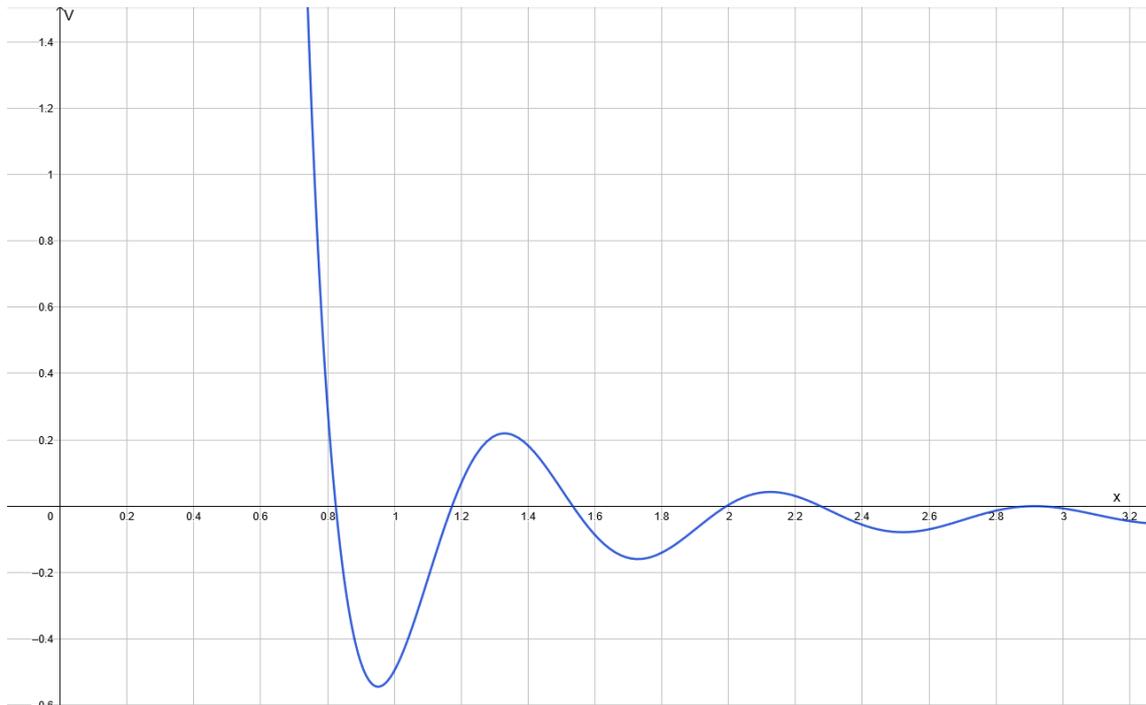


Abbildung 20: Oszillierendes Paarpotential (11).

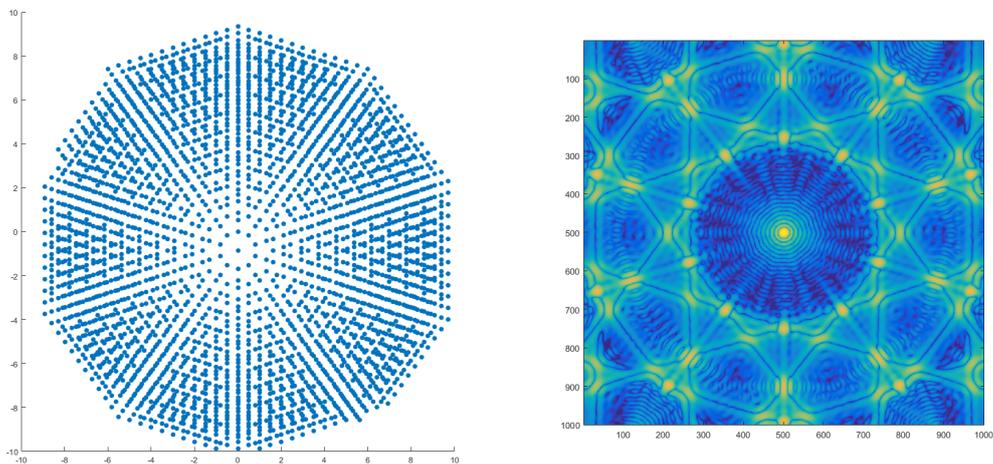


Abbildung 21: Simulation mit Potential (11) und $\frac{k_B T}{M} = \frac{3}{50}$. Die Teilchenanordnung wurde auf die x-y-Ebene projiziert. Rechts ist das dazugehörige Beugungsmuster.

Bereits bei einer zehnfach höheren Temperatur zerfällt diese fast fehlerfreie Anordnung, wie in Abbildung 22 ersichtlich ist. Diese und das zugehörige Beugungsmuster ähneln nun mehr der Anordnung, die mit dem Potential (6) bei einer niedrigen Temperatur entsteht.

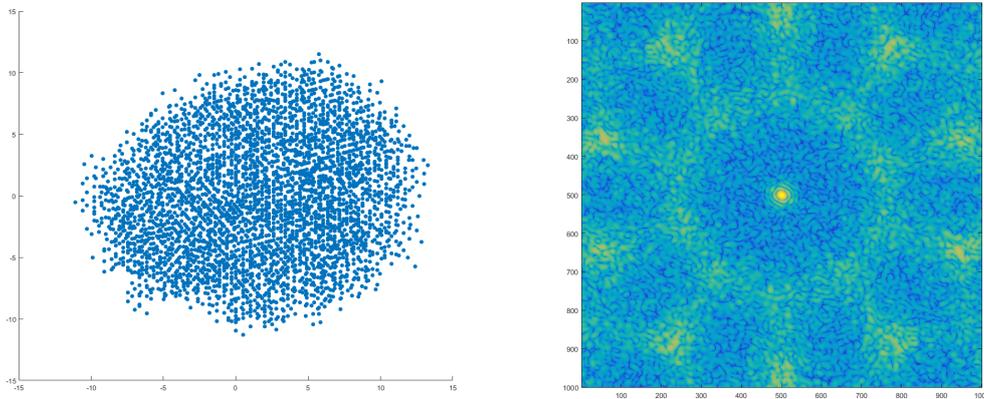


Abbildung 22: Simulation mit Potential (11) und $\frac{k_B T}{M} = \frac{3}{5}$. Auch hier ist die Teilchenanordnung auf die x-y-Ebene projiziert und das dazugehörige Beugungsmuster rechts abgebildet.

5 Diskussion der Ergebnisse

5.1 Periodische Gitter

Bei der Simulation der periodischen Gitterstrukturen unterscheiden sich die potentiellen Energien der einzelnen Positionen nur durch die Anzahl der direkten Nachbarn. Bei einer niedrigen Temperatur werden bevorzugt die Positionen besetzt, die eine größere Anzahl an Nachbarn besitzen. Daraus folgt das gleichmäßige Wachstum, das in den einzelnen Simulationen festgestellt werden konnte. Eine höhere Temperatur bewirkt hingegen, dass sich die Differenz zwischen den einzelnen Besetzungswahrscheinlichkeiten aufgrund des exponentiellen Verlaufs der Besetzungswahrscheinlichkeit reduziert, da sich die Wahrscheinlichkeiten dem Wert eins annähern. Daraus lässt sich schließen, dass die Besetzung von Positionen, die nur wenige Nachbarteilchen besitzen, bei hohen Temperaturen deutlich wahrscheinlicher wird als es bei einer niedrigen Temperatur der Fall ist.

Im zweidimensionalen Fall zeigt sich dieses Verhalten in der Bildung von Fehlstellen innerhalb des Kristalls und der Formierung der „Arme“ am Rand. Bei einer niedrigen Temperatur bilden sich die freien Positionen, die komplett von Teilchen umgeben sind, erst gar nicht oder werden mit einer sehr hohen Wahrscheinlichkeit schnell besetzt. Das Wachstum für diese Temperatur entspricht damit dem Frank-van der Merwe-Wachstum. Bei höheren Temperaturen werden stattdessen auch vermehrt Positionen am Rand gewählt, die nur einen oder zwei direkte Nachbarn besitzen. Dies führt zur festgestellten rauen Oberfläche. Die Besetzung der Positionen bei dieser Temperatur simuliert somit das Volmer-Weber-Wachstum. Somit findet zwischen den beiden beobachteten Temperaturen ein „Roughening“-Übergang statt.

Bei der Simulation der Kugelpackung können erneut beide Wachstumsmodi beobachtet werden. Wächst der Kristall ausgehend von einem Teilchen am Ursprung bei einer niedrigen Temperatur, so entsteht ein Kristall, der eine nahezu fehlerfreie fcc- oder hcp-Struktur aufweist, sodass von einem Schicht-für-Schicht-Wachstum ausgegangen werden kann. Eine Erhöhung der Temperatur sorgt für einen „Roughening“-Übergang zum Volmer-Weber-Wachstum hin. Da der Simulation alle möglichen Wachstumsrichtungen zur Verfügung gestellt werden, können nun in der höher liegenden Schicht Positionen besetzt werden, die der bisherigen Struktur widersprechen. In der darunterliegenden Schicht können nun nur noch die freien Positionen besetzt werden, die der in der oberen Schicht neu angenommenen Struktur entsprechen. Dies resultiert in abgegrenzten Regionen, die sich in ihrer Struktur unterscheiden. Dabei gibt es nicht nur Kanten zwischen den hcp- und fcc-Anordnungen, sondern auch zwischen den fcc-Anordnungen selbst, da die dritte Schicht sowohl in positiver als auch in negativer y-Richtung verschoben sein kann. Die Anzahl dieser voneinander abgegrenzten Regionen steigt dabei mit Zunahme der Temperatur, bis diese dazu führt, dass die Struktur komplett aufbricht.

Ausgehend von einer perfekten Grundschicht bilden sich bereits bei niedrigen Temperaturen unterschiedliche Regionen. Durch die Vorgabe dieser Grundebene stehen der Simulation bereits von Beginn an eine große Anzahl an Positionen zur Verfügung, die alle dieselbe Besetzungswahrscheinlichkeit besitzen. Nach der Positionierung des ersten Teilchens stehen dann zwar Positionen zur Verfügung, die energetisch günstiger sind, die große Gesamtanzahl an freien Positionen ermöglicht dennoch die Besetzung von Stellen, die nicht in der unmittelbaren Umgebung des ersten gesetzten Teilchens liegen. Dies kann dann die Formierung einer anderen Struktur in dieser Region erzwingen. Eine höhere Temperatur sorgt auch hier dafür, dass sich die Wahrscheinlichkeiten einer Besetzung demselben Wert annähern und sich somit mehrere Regionen bilden. Im Vergleich zur Simulation, die von einem Teilchen im Ursprung ausgeht, treten diese Regionen häufiger auf und bestehen gleichzeitig aus weniger Teilchen (s. Abb. 13). Auch dies kann auf die große Anzahl an möglichen Positionen zum Beginn der Simulation zurückgeführt werden. Dennoch entspricht das Wachstum für niedrige Temperaturen in beiden Fällen dem Frank-van der Merwe-Wachstum. Bevor die dritte Schicht befüllt werden kann, wird zunächst die mittlere Schicht vollständig besetzt, soweit dies möglich ist. Erst dann folgt ein Wachstum in die höheren Schichten. Bei einer höheren Ausgangstemperatur hingegen wächst der Kristall erneut im Volmer-Weber-Modus und besetzt mehrere Schichten gleichzeitig, woraus die Formierung kleiner Regionen mit unterschiedlichen Strukturen resultiert.

Die Simulation der Kugelpackung ausgehend von einer quadratischen Grundschicht zeigt dasselbe Wachstumsverhalten wie die vorherige Simulation mit einer hexagonalen Grundschicht. Allerdings treten Fehlstellen erst bei höheren Temperaturen auf, obwohl auch hier zu Beginn der Simulation mehrere Wachstumsrichtungen mit derselben Wahrscheinlichkeit vorhanden sind. Für die erste Schicht über und unter der quadratischen Gitter können die Teilchen nur Positionen einnehmen, die der fcc-Struktur entsprechen. Allerdings können ausgehend von diesen Schichten Positionen belegt werden, die von dieser Struktur abweichen. Bei einer niedrigen Temperatur werden erst die Schichten über und unter der Grundschicht besetzt. Die Besetzung erfolgt nahezu fehlerfrei, sodass sich ausgehend von diesen Schichten das Wachstum des fcc-Kristalls fortsetzt. Wie schon zuvor sorgt die höhere Temperatur auch hier wieder für eine höhere Anzahl an Besetzungen von energetisch ungünstigen Positionen. Wird ausgehend von einer nicht voll besetzten zweiten Schicht eine Position in der dritten Schicht gewählt, die der fcc-Struktur widerspricht, so verhindert die Besetzung dieser Position das fehlerfreie Wachsen der zweiten Schicht. Das macht sich wiederum durch die Bildung von Fehlstellen bemerkbar (s. Abb. 23). Wie bei der Simulation mit einem hexagonalen Grundgitter liegt bei einer niedrigen Temperatur somit das Frank-van der Merwe-Wachstum vor, das bei einer höheren Temperatur zum Volmer-Weber-Wachstum wechselt.

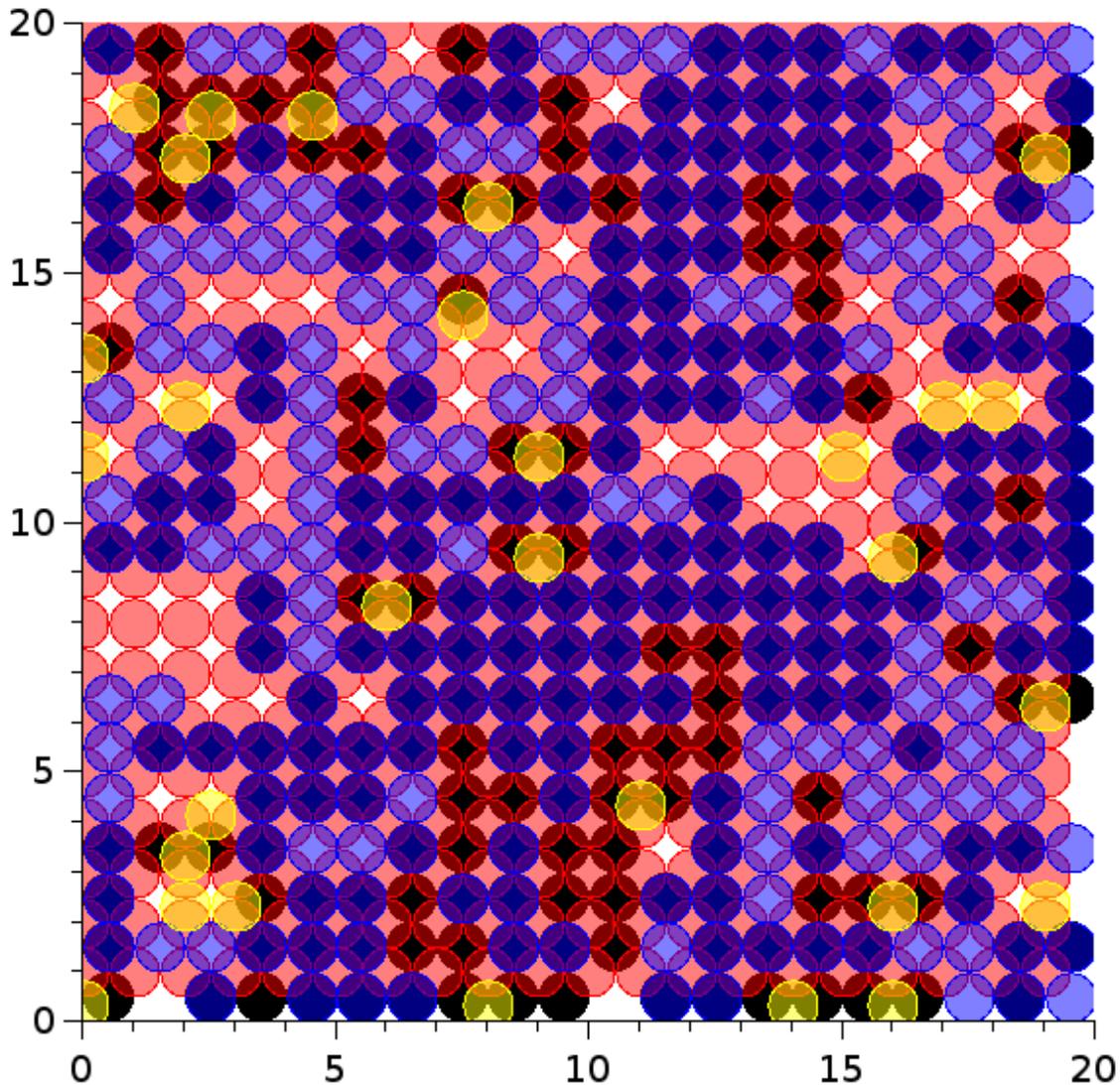


Abbildung 23: Simulation der dichten Kugelpackung ausgehend von einem quadratischen Grundgitter bei $\frac{k_B T}{\epsilon} = 2$. Außer den ersten drei Schichten wird zusätzlich die fehlerhafte vierte Schicht in gelb dargestellt.

5.2 Ikosaedrische Gittervektoren

Die Betrachtung der Resultate, die mit der Verwendung der Gittervektoren des Ikosaeders simuliert wurden, ergibt, dass auch hier das Wachstum des Substrats von der Temperatur abhängig ist.

Im Gegensatz zur Simulation von herkömmlichen Kristallen werden hier nicht nur die direkten Nachbarn in die Energieberechnung miteinbezogen, sondern alle Teilchen, die sich in einer Kugel mit dem Radius r_{max} um die Position herum befinden. Das Potential (6) liefert für die Länge der Gittervektoren r_{iko} , für den Abstand von

zwei direkten Nachbarn und für den Abstand zweier sich diagonal gegenüberliegender Teilchen $2r_{iko}$ positive Energiewerte, d. h. die Teilchen würden sich bei einer Platzierung mit dieser Entfernung gegenseitig abstoßen. Dies stellt ein Problem bezüglich der verwendeten Gittervektoren dar, da eine Besetzung dieser Positionen zu Beginn der Simulation unphysikalisch ist. Erst nachdem das erste Teilchen positioniert worden ist, werden Positionen mit einem Abstand zugänglich, die einen negativen Energiebeitrag aufweisen. Dies ist vor allem bei einer Position mit einem Abstand von τ zu den gesetzten Teilchen der Fall. Dieser befindet sich fast im Minimum des zweiten Potentialtopfes, was zur Folge hat, dass diese Positionen bei einer niedrigen Temperatur bevorzugt besetzt werden. Bei einer hohen Temperatur unterscheiden sich hingegen die Besetzungswahrscheinlichkeiten für positive und negative Energiebeiträge in einem geringeren Ausmaß, als es bei der niedrigen Temperatur der Fall ist. Dies bewirkt, dass auch die Positionen mit einem geringen Abstand und somit mit einem positiven Energiebeitrag, häufiger besetzt werden. Daraus folgt, dass das simulierte Substrat konzentrierter besetzt wurde und somit eine höhere Teilchendichte aufweist. Neben dem Zentrum, das in der Umgebung des Ursprungs entsteht, konnten bei einer niedrigen Temperatur weitere Ansätze für eine Formierung zusätzlicher Ikosaeder beobachtet werden. Dies ist bei höheren Temperaturen nicht der Fall. Die Oberfläche des Substrats ist aus denselben Gründen wie bei der periodischen Gitterstruktur bei einer niedrigen Temperatur annähernd gleichmäßig und kugelförmig. Ob man hier allerdings von einem Frank-van der Merwe-Wachstum ausgehen kann, muss näher analysiert werden. Es besteht nämlich zudem die Möglichkeit, dass es bei diesem Wachstum um eine schwach ausgeprägte Form des Volmer-Weber-Modus handelt. Eine hohe Temperatur sorgt auch hier für eine Besetzung von Positionen, die eine geringe Anzahl an benachbarten Teilchen besitzen, und damit für einen unscharf abgegrenzten Rand. Somit kann hier von einem Volmer-Weber-Wachstum ausgehen.

Die im Beugungsmuster zu erkennende Symmetrie der mit den ikosaedrischen Gittervektoren und dem Potential (6) simulierten Substrate ist für jede Temperatur nahezu identisch. Dies ist auf die geringe Anzahl an möglichen Wachstumsrichtungen zurückzuführen. Das Wachstum wird somit auf eine bestimmte Struktur eingeschränkt und kann selbst bei hohen Temperaturen nicht davon abweichen. Wird die Simulation mit weiteren Gittervektoren durchgeführt, so ist davon auszugehen, dass die Symmetrie bei hohen Temperaturen aufgebrochen wird.

In der Simulation mit dem Potential (11) und einer niedrigen Temperatur entsteht eine gleichmäßige Schneeflocke. Die Ursache hierfür ist, dass im Gegensatz zum Potential (6) beim Potential (11) alle auftretenden Abstände in den Potentialtöpfen liegen. Die Tiefe der Töpfe nimmt dabei mit Zunahme des Abstandes ab. Der Abstand r_{iko} stellt somit das absolute Minimum dar, dicht gefolgt vom Abstand eins. Nachdem das erste Teilchen beispielsweise auf eine Ecke des im Ikosaeder auftretenden Fünfecks platziert wurde, erhöht sich die Besetzungswahrscheinlichkeit der Nachbarn in dieser Ebene drastisch. Aber auch ein fortgesetztes Wachstum in dieselbe Richtung wird durch dieses Potential begünstigt, sodass das Wachstum symmetrisch ausgehend vom Zentrum fortgeführt wird, wie in Abbildung 18 zu erkennen ist. Dieses

Wachstum entspricht damit unter allen Simulationen mit einer ikosaedrischen Grundstruktur am ehesten den Frank-van der Merwe-Wachstum. Da bei höheren Temperaturen ein Substrat simuliert wird, das dem mit Potential (6) bei niedriger Temperatur ähnelt, ist davon auszugehen, dass auch hier bei einer noch höheren Temperatur ein „Roughening“-Übergang stattfindet. Dies sollte mit weiterführenden Simulationen untersucht werden.

Die Beugungsmaxima im Beugungsmuster dieser Anordnung sind außerordentlich scharf und zeigen erneut die 10-fache Rotationssymmetrie der Projektion. Dass diese Anordnung schon bei einer 10-fach höheren Temperatur verworfen wird, zeigt, dass für niedrige Temperaturen der erste Potentialtopf ausschlaggebend für das Wachstum ist, da höhere Temperaturen den Unterschied zwischen den Töpfen reduzieren. Bei Verwendung dieses Potentials ist es möglich, dass auch bei der Hinzunahme weiterer Vektoren die Schneeflockenstruktur bei niedriger Temperatur erhalten bleibt, bei höheren Temperaturen jedoch die 10-fache Symmetrie wiederum aufbricht.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Das erstellte Programm zur Simulation des Wachstums von Quasikristallen ist in der Lage Substrate zu generieren, die den Strukturen entsprechen, die man mit den jeweils verwendeten Potentialen und Gittervektoren erwarten würde. Werden periodische Gitterstrukturen vorgegeben, zeigten die Simulationen bei niedrigen Temperaturen ein gleichmäßiges Wachstum, das dem Frank-van der Merwe-Wachstum entspricht. Höhere Temperaturen bewirkten hingegen das Volmer-Weber-Wachstum. Somit ist davon auszugehen, dass zwischen den beiden beobachteten Temperaturen ein Übergang zwischen den beiden Modi bei einer bestimmten Temperatur erfolgt, deren Höhe in zukünftigen Arbeiten noch systematisch analysiert werden sollte. Das Programm ist somit imstande, Simulationen mit periodischen Grundgittern durchzuführen, die den physikalischen Erwartungen entsprechen.

Bei der Verwendung von ikosaedrischen Gittervektoren konnten bezüglich des Wachstums ebenfalls unterschiedliche Modi festgestellt werden. Allerdings bietet die Simulation hinsichtlich des Wachstums eines Quasikristalls noch großes Verbesserungspotential. Die Position des ersten Teilchens sollte mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit an der Stelle erfolgen, die im Minimum des Potentials liegt. Die Kombination aus dem verwendeten Potential und den Gittervektoren verhindert dies allerdings. Um dieses Problem zu beheben, könnten der Simulation weitere Vektoren bereitgestellt werden, die ebenfalls einen Ikosaeder darstellen, der allerdings einen größeren Kantenkugeleradius besitzt (wie beispielsweise den Abstand τ). Dies könnte dann zu einer klaren langreichweitigen Ordnung beitragen und hätte Auswirkungen auf die Symmetrie des Substrats, die bisher bei jeder verwendeten Temperatur erhalten blieb und auf die Dichte, die aktuell bei einer höheren Temperatur größer ausfällt.

Die Verwendung weiterer Vektoren bedeutet allerdings eine deutliche Erhöhung der Laufzeit der Simulation, die bei der Verwendung von ikosaedrischen Gittervektoren und einer Teilchenanzahl von 6000 zwischen 30 und 45 Minuten liegt. Aus diesem Grund ist es empfehlenswert den Algorithmus für das Setzen der Teilchen weiter zu optimieren. Wird ein Teilchen gesetzt, muss für jede freie Position, die sich in der Nähe des neu gesetzten Teilchens befindet, die Energie erneut berechnet werden. Ist diese Position von mehreren Teilchen aus erreichbar, erfolgt die Berechnung mit dem aktuellen Algorithmus mehrfach. Um dies zu verhindern, könnte man die bereits behandelten Positionen in einer temporären Liste abspeichern, sodass der Energiewert für diese Position bei erneutem Auftreten der Position entnommen werden kann. Um die Teilchen, deren freie Positionen aktualisiert werden müssen, zu ermitteln, muss einmal die gesamte Teilchenliste durchlaufen werden. Dies macht sich vor allem bei einer größeren Anzahl an Teilchen bemerkbar. Die Implementierung einer Zellliste könnte die hierfür benötigte Zeit deutlich reduzieren. Diese teilt das System in gleichgroße Abschnitte ein. Wird eine neue Position ausgewählt, so können die Teilchen, deren freie Positionen aktualisiert werden müssen, effizienter ermittelt werden. Auch die Positionsfindung könnte dadurch beschleunigt werden, indem man für jede Zelle

die Gesamtbesetzungswahrscheinlichkeit seiner in ihr befindlichen Teilchen aufsummiert und mit einer dritten Zufallszahl abgleicht.

Auch eine Umsetzung, die gänzlich auf die Verwendung fester Gittervektoren verzichtet, wäre denkbar. Dabei wird zunächst per Zufall eines der bereits gesetzten Teilchen als Ausgangspunkt gewählt. Anschließend werden ein zufälliger Einheitsvektor und eine zufällige Länge, die zwischen dem Mindestabstand und r_{max} liegt, generiert. Für die sich so ergebende Position wird dann geprüft, ob eine Besetzung derselbigen möglich ist. Ist dieser Fall gegeben, wird für die Position die Energiedifferenz berechnet und dann mit Hilfe der „importance sampling“-Monte-Carlo-Methode entschieden, ob die Position besetzt wird oder nicht.

Zusammenfassend lässt sich schlussfolgern, dass die Simulation mit den verwendeten ikosaedrischen Vektoren zum aktuellen Zeitpunkt nicht zur Untersuchung des Wachstums eines einkomponentigen Quasikristalls geeignet ist. Das Wachstum weist zwar augenscheinlich unterschiedliche Modi für verschiedene Temperaturen auf, allerdings ist eine langreichweitige Ordnung nur bedingt gegeben. Da die Simulation bisher allerdings keine Reparatur durch Phasonenflips erlaubt, besteht auch die Möglichkeit, dass dies für die fehlende langreichweitige Ordnung verantwortlich ist. Allerdings fehlt es bisher an einer ausreichend großen Menge an Simulationen, die optimalerweise mit den angesprochenen Verbesserungen durchgeführt werden sollten, um die nicht vorhandene Ordnung der fehlenden Phasonenflips eindeutig zuschreiben zu können.

Literatur

- [1] BINDER, K. ; HEERMANN, D. W.: *Monte Carlo Simulation in Statistical Physics - An Introduction*. Fifth Edition. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2010
- [2] BINDI, L. ; STEINHARD, P. J. ; YAO, N. ; LU, P. J.: Icosahedrite, $\text{Al}_{63}\text{Cu}_{24}\text{Fe}_{13}$ the first natural quasicrystal. In: *American Mineralogist* 96 (2011), S. 928–931
- [3] ENGEL, M. ; DAMASCENO, P. F. ; PHILLIPS, C. L. ; GLOTZER, S. C.: Computational self-assembly of a one-component icosahedral quasicrystal. In: *Nature Materials* 14 (2015), S. 109–116
- [4] HUNKLINGER, S.: *Festkörperphysik*. Oldenbourg Verlag München, 2009
- [5] INTERNATIONAL UNION OF CRYSTALLOGRAPHY: *Online Dictionary of Crystallography: Crystall*. <http://reference.iucr.org/dictionary/Crystal>
- [6] JOSEPH, D. ; ELSER, V.: A model of Quasicrystal Growth. In: *Physical Review Letters* 79 (1997), Nr. 6, S. 1066–1069
- [7] LEVI, A. C. ; KORTLA, M.: Theory and simulation of crystal growth. In: *Journal of Physics: Condensed matter* 9 (1997), Nr. 299, S. 299–344
- [8] METROPOLIS, N. ; ROSENBLUTH, A. W. ; ROSENBLUTH, M. N. ; TELLER, A. H.: Equation of State Calculations by Fast Computing Machines. In: *The Journal of Chemical Physics* 21 (1953), Nr. 6, S. 1087–1092
- [9] MIHALKOVIČ, M. ; HENLEY, C. L. ; WIDOM, M. ; GANESH, P.: Empirical oscillating potentials for alloys from ab-initio fits. (2008), 02
- [10] NAGAO, K. ; INUZUKA, T. ; NISHIMOTO, K. ; EDAGAWA, K.: Experimental Observation of Quasicrystal Growth. In: *Physical Review Letters* 115 (2015)
- [11] NOLTING, W.: *Grundkurs Theoretische Physik 7 - Viel-Teilchen-Theorie*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2002
- [12] REICHL, L. E.: *A Modern Course in Statistical Physics*. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2016
- [13] SHECHTMAN, D. ; BLECH, I. ; GRATIAS, D. ; CAHN, J. W.: Metallic Phase with Long-Range Orientational Order and No Translational Symmetry. In: *Phys. Rev. Lett.* 53 (1984), Nov, 1951–1953. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.53.1951>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.53.1951
- [14] STEURER, W.: Quasicrystal structure and growth models: discussion of the status quo and the still open questions. In: *Journal of Physics: Conference Series* 809 (2017)
- [15] STEURER, W. ; DELOUDI, S.: *Crystallography of Quasicrystals - Concepts, Methods and Structures*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2009

Literatur

- [16] SUCK, J. B. ; SCHREIBER, M. ; HÄUSSLER, P: *Quasicrystals - An Introduction to Structure, Physical Properties, and Applications*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2002