Phason-elastische Energie in dekagonalen Quasikristallen

Von der Fakultät Mathematik und Physik der Universität Stuttgart zur Erlangung der Würde eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.) genehmigte Abhandlung

> Vorgelegt von Ulrich Koschella aus Gaildorf

Hauptberichter : Prof. Dr. Hans-Rainer Trebin Mitberichter : Prof. Dr. Hans Herrmann

Tag der mündlichen Prüfung : 15.07.2005

Institut für Theoretische und Angewandte Physik Universität Stuttgart

2005

Für meine Eltern

Inhaltsverzeichnis

Summary					
1 Einleitung					
2	Quasikristalle				
	2.1	Einleit	ung	3	
	2.2	Konstr	uktion von quasiperiodischen Strukturen	4	
		2.2.1	Der Streifenprojektionsformalismus	4	
		2.2.2	Die Methode der atomaren Hyperflächen	5	
	2.3	Grund	begriffe	6	
	2.4	Phasor	nische Verschiebung	7	
	2.5	Period	ische Approximanten	8	
	2.6	Diskre	ter Orthogonalraum, minimale Einbettung	10	
	2.7	Der Po	olarenkalkül	11	
	2.8	Dekage	onale quasiperiodische Strukturen	14	
		2.8.1	Hypergitter	14	
		2.8.2	Basen	15	
		2.8.3	Das Tübinger Dreiecksmuster	16	
		2.8.4	Das Penrose-Tiling	18	
	2.9	Die Bi	närtilings	19	
		2.9.1	Hexagon-Boot-Stern-Tiling	20	
		2.9.2	Mikulla-Roth-Tiling	20	
		2.9.3	Gähler-Baake-Tiling	22	
		2.9.4	Flips	23	
		2.9.5	Supertiling	24	
	2.10 Matching-Rules		ing-Rules	24	
		2.10.1	Matching Rules im Mikulla-Roth-Tiling	26	
2.11 Random-Tilings		m-Tilings	28		
		2.11.1	Definition	29	
		2.11.2	Hebung in den Hyperraum	29	
		2.11.3	Globale phasonische Verzerrung	30	
		2.11.4	Flips	31	
		2.11.5	Entropie	31	
		2.11.6	Symmetrie	32	

ર	Elas	tizitätsthoorio dor Quasikristallo	22		
J	3.1 Die klassische Elestizitätstheorie				
	3.2	Erweiterung der Elestizitätstheorie für Quesikristelle	35		
	0.2 3 3	Das Locked-State-Verbalten	37		
	5.5 Das Locked-State-Venlatten				
4	Phason-elastische Konstanten				
	4.1	Elastische Konstanten aus Relaxations-Simulationen	41		
	4.2	Phason-elastische Energie über den Polarenkalkül	44		
		4.2.1 Verfahren	44		
		4.2.2 Details zur Berechnung	45		
		4.2.3 Berechnung für Abschneideradius 1.92	53		
	4.3	Beschränkung auf Paarpotentiale	58		
		4.3.1 Details zur Berechnung	58		
		4.3.2 Berechnung für Abschneideradius 8	64		
5	Gru	ndzustände aus Monte-Carlo-Simulationen	69		
	5.1	Grundlagen	70		
	5.2	Vorgehen	72		
	5.3	Ergebnisse	73		
6	Zusammenfassung				
\mathbf{A}	Die	Diedergruppe D_{10}	81		
в	Symmetrieangepasste Basis des Verzerrungstensors				
С	C Koeffizienten der freien Energiedichte				
Lit	Literaturverzeichnis				
\mathbf{Le}	Lebenslauf				

iv

Danksagung

Summary

In 1984 Shechtman et al. discovered an AlMn alloy with a diffraction pattern of Bragg peaks and crystallographically forbidden symmetry [31]. This points to a new kind of order in solid state matter. On the one hand, there must be long range order because of the Bragg peaks, on the other hand, this order cannot be periodicity because of the point symmetry. Levine and Steinhardt [24] explained this antagonism with aperiodic lattices like the Penrose tiling [28] or its three-dimensional analog [3]. These lattices possess long range bond orientational order. The diffraction pattern consists of delta functions and the point symmetry is non-crystallographic. Comparable to the single unit cell in periodic lattices, the quasiperiodic lattices have a finite number of tiles, which fill space without gaps and overlaps. Elser [5] and Henley [10] found that random tilings built from the tiles of the quasiperiodic lattices also have a non-crystallographic point symmetry and a diffraction pattern consisting of Bragg peaks.

The quasiperiodic lattices are a model for an energy stabilized quasicrystal because of their perfect order, while the random tilings are a model for an entropic stabilized quasicrystal, due to their configurational entropy. Deviations from the perfect quasiperiodic order can be described with a generalized so called phason displacement or with its gradient, the phason strain. Tiling models yield a quadratic behaviour of the free elastic energy as a function of phason strain for the entropic stabilized quasicrystals, while the dependence is predicted to be a non-analytic linear one for the energy stabilized quasicrystal by the so called locked state theory.

Structure models of real quasicrystals are described by decorating the tiles with atoms [6, 12, 27]. This description is compatible both with the perfect ordered model and the random tiling. For the entropy stabilized quasicrystal one can switch from the tiling picture to an atomic model by the assumption that local atomic environments in the order of magnitude of the tile dimensions are strongly bound, while the arrangement of these environments is random. Thus the dependence of the free energy can be transferred from the tiling model to the atomic one. For energetic stabilization, certain tile configurations, which violate matching rules, get a penal energy. One cannot easily transfer this energy model to

atomic interactions. Thus the non-analytic behaviour of the free energy has not yet been described in an atomic model. In this thesis we discuss energy stabilization of an atomic two-dimensional model quasicrystal of decagonal symmetry.

In chapter 2 we explain the construction of quasiperiodic lattices by higher dimensional periodic lattices. Phason displacement and phason strain and various concepts of quasicrystal description are introduced. The common two-dimensional decagonal model quasicrystals are presented. In section 2.11 the important properties of the random tilings are discussed. In chapter 3 the elasticity theory is extended for quasicrystals. The behaviour of the free energy for both the entropic and the energetic stabilized cases is discussed. In chapter 4 molecular dynamics relaxation simulations are described, which determine the dependence of the energy on both phonon and phason strain. The free energy is expanded into the components of phason strain, parametrized by the atomic interactions. This expansion yields the general dependence of the free energy on phason strain. Furthermore one can predict features of the atomic interactions, which yield an energetic stabilization of the quasicrystal. To compare the quasicrystal and its approximants with the ground state, in chapter 5 Monte-Carlo cooling simulations are performed.

The molecular dynamics relaxation simulations deliver all generalized elastic constants. These can be divided in two phonon elastic constants, the bulk modulus and the shear modulus, two phason elastic constants and a coupling constant between the shear strain and one phason strain mode. For Lennard-Jones interactions one phason elastic constant turns out to be negative, which means that the quasicrystal is unstable with respect to this phason mode. This is in agreement with results from Lee et al. [23], which show that the ground state of this binary tiling model with Lennard-Jones potentials is a crystal. The expansion of the free energy into phason strain shows quadratic behaviour for small potential cut-off radii. By the quantitative results, a prediction for a modification of the potentials can be given, which lowers the absolute value of the negative phason elastic constant. The sum of the two phason elastic constants, which corresponds to phason modes with constant stoichiomety, is positive. Monte-Carlo simulations with the modified

SUMMARY

potentials show that the local environments of the quasicrystal now are stabilized. The ground state is a super-tile random tiling. To drive both phason elastic constants positive, one has to go to larger values for the cut-off radius. For large cut-off radii, apart from the quadratic terms non-analytic linear terms show up, as predicted by the locked state theory [32]. They exactly resemble the matching rules, as they weight the distances occuring in the allowed and disallowed tile clusters, which describe the matching rules and their violations respectively. These linear terms contribute to the free energy non-negligibly only, if the potentials have very strong gradients at extremely sharply defined, large distances.

In conclusion, both molecular dynamics relaxation simulations and the expansion of the free energy for small cut-off radii show a quadratic behaviour of the free energy on phason strain. With appropriate potentials, these quadratic terms can stabilize the local environments of the quasicrystal in the order of magnitude of the cut-off radius. The ground state then is a super-tile random tiling. Long range quasiperiodic order cannot be established by these quadratic terms. For large potential cut-off radii, the expansion of the free energy yields additional non-analytic linear terms, which are required to establish long range order. These terms occur only at distances, which are larger than commonly used cut-off radii. Their contribution to the free energy is negligible unless the potentials have very peculiar features.

These results show that the locked state theory is an academic model. Real low temperature quasicrystals are presumably frozen super-tile random tilings with phason strain zero and small fluctuations.

Kapitel 1 Einleitung

Als Shechtman et al. 1984 an einer abgeschreckten AlMn-Legierung Beugungsbilder mit scharfen Bragg-Peaks und kristallographisch verbotener Symmetrie fanden [31], war eine neue Klasse von Festkörpern entdeckt. Einerseits muss die Legierung wegen der Bragg-Peaks eine weit reichende Translationsordnung besitzen, andererseits kann diese wegen der Punktsymmetrie nicht periodisch sein. Levine und Steinhardt [24] erklärten dies mit aperiodischen Gittern, die eine weit reichende Bindungsorientierungsordnung besitzen, wie dem zweidimensionalen Penrosemuster [28] oder seinem dreidimensionalen Analogon [3]. Die Beugungsbilder dieser Gitter bestehen aus Delta-Funktionen, und sie können nichtkristallographische Punktsymmetrien aufweisen. Entsprechend der Einheitszelle bei periodischen Gittern gibt es für diese guasiperiodischen Gitter eine endliche Anzahl von Kacheln, die den Raum lückenlos und überlappungsfrei überdecken, wenn man sie an die Gitterpunkte anlegt. Elser [5] und Henley [10] stellten fest, dass auch Zufallsparkettierungen aus denselben Kacheln im Ensemblemittel nichtkristallographische Symmetrie und Beugungsbilder mit Bragg-Reflexen aufweisen.

Wegen der perfekten Ordnung sind die quasiperiodischen Gitter ein Modell für energiestabilisierte Quasikristalle, während die Zufallsparkettierungen aufgrund der Konfigurationsentropie ein Modell für entropiestabilisierte Quasikristalle sind. Abweichungen von der quasiperiodischen Ordnung lassen sich mit einer verallgemeinerten, sogenannten phasonischen Verschiebung beziehungsweise deren Gradient, der phasonischen Verzerrung, beschreiben. Parkettierungsmodelle ergeben ein quadratisches Verhalten der freien Energie in dieser phasonischen Verzerrung für die entropiestabilisierten Quasikristalle, während für die energiestabilisierten ein nichtanalytisches lineares Verhalten vorausgesagt wird.

Strukturmodelle für reale Quasikristalle werden durch eine atomare Dekoration der Kacheln beschrieben [6, 12, 27]. Damit sind sie sowohl mit den quasiperiodischen Gittern als auch mit den Zufallsparkettierungen kompatibel. Für die entropiestabilisierten Quasikristalle kann der Übergang vom Parkettierungsmodell zu einer atomaren Struktur gemacht werden, indem man fordert, dass die lokalen atomaren Umgebungen auf der Größenordnung der Kacheln energetisch stark favorisiert sind, die Anordnung dieser Umgebungen zueinander dagegen zufällig erfolgt. Das Verhalten der freien Energie kann somit vom Parkettierungsmodell auf das atomare übertragen werden. Für die energetische Stabilisierung werden bestimmte Kachelkonfigurationen, die gegen Anlegeregeln verstoßen, mit Strafenergien belegt. Es ist a priori nicht klar, wie man diese spezielle Energiebewertung auf atomare Wechselwirkungen übertragen kann. Das nichtanalytische Verhalten der freien Energie wurde deshalb noch nicht in einem atomaren Modell beschrieben. Diese Arbeit beschäftigt sich mit der energetischen Stabilisierung eines atomaren zweidimensionalen Modellquasikristalls mit dekagonaler Symmetrie.

In Kapitel 2 wird zunächst die Konstruktion guasiperiodischer Gitter aus höherdimensionalen periodischen Gittern beschrieben. Wir führen die phasonische Verschiebung und Verzerrung ein. Die gängigen zweidimensionalen dekagonalen Modellquasikristalle werden vorgestellt. In Abschnitt 2.11 wird auf die wichtigsten Eigenschaften der Zufallsparkettierungen eingegangen. In Kapitel 3 wird die klassische Elastizitätstheorie für Quasikristalle erweitert. Das Verhalten der freien Energie in den zwei Stabilisierungsszenarien wird diskutiert. In Kapitel 4 werden molekulardynamische Relaxationssimulationen vorgestellt, mit denen man die Abhängigkeit der Energie von den Verzerrungen gewinnt. Es wird eine Entwicklung der freien Energie nach der phasonischen Verzerrung vorgestellt, die durch die atomare Wechselwirkung parametrisiert ist. Diese Entwicklung liefert zum einen die allgemeine Abhängigkeit der freien elastischen Energie von der phasonischen Verzerrung, zum anderen kann man vorhersagen, wie atomare Wechselwirkungen aussehen müssen, damit sie einen Quasikristall energetisch stabilisieren. Um den Quasikristall und seine Approximanten mit dem Grundzustand vergleichen zu können, wurden Monte-Carlo-Kühlsimulationen durchgeführt, die in Kapitel 5 vorgestellt werden.

Kapitel 2

Quasikristalle

2.1 Einleitung

Bis zur Entdeckung der Quasikristalle [31] galten Bragg-Reflexe in Beugungsbildern von Festkörpern als klarer Beweis für Translationsperiodizität [7]. Diese Periodizität schränkt die möglichen Punktsymmetrien stark ein. Im zwei- und dreidimensionalen Raum können periodische Strukturen nur zwei-, drei-, vier- und sechszählige Symmetrieachsen haben. Die von Shechtman et al. [31] entdeckte metallische Legierung zeigt ikosaedrische Punktsymmetrie, die insbesondere eine kristallographisch verbotene fünfzählige Achse enthält. Die Bragg-Reflexe einerseits und die kristallographisch verbotene Symmetrie andererseits führen zu dem Schluss, dass Quasikristalle zwar eine Translationsordnung besitzen müssen, aber keine einfache Translationsperiodizität. Daraus leitet sich die klassische Definition von Quasikristallen nach Steinhardt und Ostlund ab [34]: "Unter einer translationsgeordneten Struktur versteht man eine Struktur, deren Streuamplitude als Summe von Bragg-Reflexen darstellbar ist. Eine *n*-dimensionale guasiperiodische Struktur ist eine translationsgeordnete Struktur, deren minimale Basis im Fourierraum einen endlichen Rang größer n hat. Ein Quasikristall ist eine quasiperiodische Struktur mit nichtkristallographischer Symmetrie."

Neben den dreidimensionalen Quasikristallen, die ikosaedrische Punktsymmetrie tragen, gibt es sogenannte T-Phasen. Dies sind zweidimensionale Quasikristalle, die in der dritten Raumrichtung periodisch gestapelt sind. Experimentell bekannt sind T-Phasen mit acht-, zehn- und zwölfzähligen Symmetrieachsen. Daneben gibt es noch eindimensionale Quasikristalle, die aus aperiodisch gestapelten Ebenen bestehen. Innerhalb der Ebenen sind sie periodisch.

Zweidimensionale Quasikristalle, wie sie in dieser Arbeit behandelt werden, dienen also als Modell für die T-Phasen, wenn man an Eigenschaften interessiert ist, die von der Quasiperiodizität in den Ebenen herrühren und nicht von der periodischen Stapelung.

2.2 Konstruktion von quasiperiodischen Strukturen

Eine *n*-dimensionale quasiperiodische Struktur hat laut Definition im Fourierraum eine Basis mit Rang d > n. Schon deshalb kann die Struktur im physikalischen Raum kein translationsperiodisches Gitter sein¹. Allerdings kann man sich ein Gitter in einem höherdimensionalen, mindestens *d*-dimensionalen Raum vorstellen, das eine entsprechende Struktur im Fourierraum hat. Daraus resultiert die Idee, quasiperiodische Strukturen als Projektionen höherdimensionaler Gitter zu konstruieren.

2.2.1 Der Streifenprojektionsformalismus

Zur anschaulichen Erklärung des Streifenprojektionsformalismus wählen wir als Hypergitter das zweidimensionale Quadratgitter \mathbb{Z}^2 und suchen eine eindimensionale quasiperiodische Struktur. Schneidet man das Hvpergitter \mathbb{Z}^2 mit dem eindimensionalen physikalischen Raum oder Parallelraum E^{\parallel} , so muss man zwei Fälle unterscheiden. Hat der Unterraum relativ zum Gitter eine rationale Steigung, so ist der Schnitt ein eindimensionales Untergitter äquivalent zu Z. Ist die Steigung dagegen irrational, schneidet der Unterraum das Gitter nur im Ursprung. Verschiebt man das Einheitsquadrat W entlang des physikalischen Raumes E^{\parallel} , entsteht ein Streifen S. Projiziert man nun alle Hypergitterpunkte, die in diesem Streifen liegen, senkrecht in den Parallelraum, so erhält man eine guasiperiodische Struktur (siehe Abbildung 2.1). Ist die Steigung des physikalischen Raumes der Kehrwert des Goldenen Schnitts, erhält man die sogenannte Fibonacci-Kette, eine aperiodische Folge von kurzen (S) und langen (L) Abständen. Das Verhältnis der Abstände ist der Goldene Schnitt.

Der Projektionsformalismus lässt sich auch folgendermaßen umformulieren. Der Orthogonalraum E^{\perp} sei der Komplementärraum des physikalischen Raums bezüglich des Hyperraums. In unserem Beispiel also der eindimensionale Unterraum, der senkrecht auf dem physikalischen Raum steht. Der Akzeptanzbereich \mathcal{A} sei die Projektion des Einheitsquadrats

 $^{^{1}}$ Die Gitter im direkten und reziproken Raum haben gleichen Rang.



Abbildung 2.1: Streifenprojektionsformalismus für die Fibonacci-Kette.

 \mathcal{W} in den Orthogonalraum. Dann werden alle Hypergitterpunkte in den Parallelraum projiziert, deren Projektionen in den Orthogonalraum im Akzeptanzbereich liegen.

Sowohl der Streifen S als auch der Akzeptanzbereich A müssen halboffen gewählt werden. Von zwei gegenüberliegenden Randflächen darf nur eine zum Streifen beziehungsweise Akzeptanzbereich gehören. (In Abbildung 2.1 ist dies für den Streifen mit der durchgezogenen beziehungsweise gestrichelten Linie angedeutet.) Bei der Konstruktion der Fibonacci-Kette würden sonst zum Beispiel alle vier Ecken des Einheitswürfel projiziert, was zu einem zu kurzen Abstand führen würde.

2.2.2 Die Methode der atomaren Hyperflächen

Auch bei der Methode der atomaren Hyperflächen wählt man zunächst ein Hypergitter und einen Unterraum als physikalischen Raum. Nun wird an jeden Hypergitterpunkt eine sogenannte atomare Hyperfläche \mathcal{H} angehängt. Die resultierende Struktur entsteht aus dem Schnitt der Hyperflächen mit dem Parallelraum (Abbildung 2.2). Die atomaren Hyperflächen müssen senkrecht zum Parallelraum sein. Verwendet man



Abbildung 2.2: Konstruktion der Fibonacci-Kette mit atomaren Hyperflächen.

beim Projektionsformalismus und bei der Methode der atomaren Hyperflächen das gleiche Hyperflächen und den gleichen Parallelraum und wählt als atomare Hyperfläche die Rauminversion des Akzeptanzbereiches des Projektionsformalismus ($\mathcal{H} = -\mathcal{A}$), so erhält man mit beiden Methoden dieselbe Struktur.

2.3 Grundbegriffe

Wir wollen zunächst ein paar Grundbegriffe einführen, die in den folgenden Abschnitten benötigt werden.

Die in den physikalischen Raum projizierten Hypergitterpunkte nennen wir Vertizes. Durch Verbinden benachbarter Vertizes entstehen Tiles. Bei der Fibonacci-Kette sind die Tiles die Abstände L und S. Die Menge aller Tiles, die den physikalischen Raum lückenlos und überlappungsfrei überdecken, nennen wir Tiling.

Zwei Tilings nennen wir lokal isomorph, wenn jede endliche Umgebung des einen Tilings auch im anderen vorkommt und umgekehrt. Alle Tilings, die zu einem gegebenen lokal isomorph sind, bilden seine lokale Isomorphieklasse.



Abbildung 2.3: Flips bei konstanter Verschiebung. Aus einigen SL-Sequenzen wird LS.

2.4 Phasonische Verschiebung

Eine Verschiebung des Hypergitters kann unterschiedliche Auswirkungen auf das resultierende Tiling haben. Hat die Verschiebung nur eine Komponente u^{\parallel} in Richtung des Parallelraums, so wird das Tiling im Parallelraum verschoben. Wir nennen so eine Verschiebung im Folgenden phononische Verschiebung, sie entspricht der bekannten Verschiebung in der Kontinuumsmechanik.

Hat eine Verschiebung dagegen nur eine Komponente u^{\perp} in Richtung des Orthogonalraums, so wird das Tiling nicht verschoben, aber die projizierten Hypergitterpunkte sind andere. Verschieben wir zum Beispiel das Hypergitter ein kleines Stück in positiver Richtung des Orthogonalraums, so wird die linke obere Ecke des Einheitsquadrats nicht mehr projiziert, dafür die rechte untere Ecke (Abbildung 2.3). In der resultierenden Struktur werden aus einigen Abfolgen von kurzem und langen Abstand *SL* die Abfolgen *LS*. Die auftretenden Abstände bleiben aber die gleichen. Wir nennen eine solche Verschiebung phasonische Verschiebung. Die aus einer solchen Verschiebung resultierende sprunghafte Positionsänderung eines Vertex im Tiling nennen wir phasonischen Flip.

Jede konstante phasonische Verschiebung verursacht unendlich viele Flips. Die entstehende Struktur ist zu der ursprünglichen lokal isomorph.

2.5 Periodische Approximanten

Wir lassen nun zu, dass sich die phasonischen Verschiebungen $u^{\perp}(x^{\parallel})$ in Abhängigkeit von der Ortsraumkoordinate ändern. Die Ableitung $\partial u^{\perp}/\partial x^{\parallel}$ der phasonischen Verschiebung nach der Ortsraumkoordinate nennen wir phasonische Verzerrung. Eine konstante phasonische Verzerrung entspricht einer Scherung des Hypergitters parallel zum Orthogonalraum.

Die lokalen Änderungen des Tilings lassen sich wie bei der konstanten phasonischen Verschiebung durch Flips beschreiben. Allerdings erhält man beim Anlegen einer phasonischen Verzerrungen ein Tiling, das zum ursprünglichen nicht mehr lokal isomorph ist.

Wählen wir die phasonische Verzerrung gerade so, dass neben dem Ursprung ein weiterer Hypergitterpunkt genau im physikalischen Raum liegt, so entsteht eine periodische Struktur. In Abbildung 2.4 fällt der Punkt (5,2) auf den physikalischen Raum, es entsteht eine periodische Struktur mit Einheitszelle *SLLLSLL*.

Zu beachten ist, dass nun der Streifen die Verschiebung des verzerrten Einheitswürfels entlang des Parallelraums ist. Verwendet man den ursprünglichen Streifen, entstehen Defekte im projizierten Tiling. Das gleiche gilt für den Akzeptanzbereich beziehungsweise für die atomaren Hyperflächen. Im gezeigten Beispiel ist der Streifen also etwas schmaler als der der Fibonacci-Kette, da der Punkt (1,0) stärker verschoben wird als der Punkt (0,1).

Wenn man die phasonische Verzerrung schrittweise so verkleinert, dass immer eine periodische Struktur entsteht, wird die Einheitszelle dieser Strukturen immer größer und die Sequenz konvergiert gegen die aperiodische Fibonacci-Kette. Man nennt diese Strukturen deshalb periodische Approximanten.

Periodische Approximanten kann man auch erhalten, indem man den Schnittstreifen verkippt statt das Hypergitter zu deformieren (Abbildung 2.5). Allerdings darf man nicht die Orientierung des physikalischen Raums E^{\parallel} ändern, da sich sonst die Größe der Tiles ändert. Man unterscheidet bei dieser Betrachtung deshalb zwischen dem Schnittraum E^{cut} , um den der Streifen liegt, und dem physikalischen Raum. Hier



Abbildung 2.4: Periodischer Approximant der Fibonacci-Kette. Rot sind seine Gittervektoren angezeigt.

lautet die Bedingung für periodische Approximanten, dass die Steigung des Schnittraums rational ist. Zwischen der Steigung des Schnittraums und der phasonischen Verzerrung gibt es eine Eins-zu-Eins-Beziehung.

Für theoretische Modelle oder Computersimulationen benötigt man häufig sogenannte periodische Randbedingungen. Das heißt, der linke Rand einer endlichen Konfiguration wird mit dem rechten identifiziert, der obere mit dem unteren. So hat man keine Oberflächeneffekte, die Konfiguration erscheint als unendlich ausgedehnter Kristall. Für periodische Randbedingungen muss die Struktur allerdings periodisch in den Randvektoren der Simulationsbox sein. Deshalb verwendet man als Modell für Quasikristalle häufig große Approximanten, da diese dem Quasikristall sehr ähnlich sind, man aber für sie periodische Randbedingungen verwenden kann.

Für uns bieten die periodischen Approximanten einen weiteren Vorteil. Wir wollen im Folgenden die Abhängigkeit der freien elastischen Energie



Abbildung 2.5: Periodischer Approximant erhalten durch Kippen des Streifens.

von der phasonischen Verzerrung untersuchen. Da bei der Konstruktion von Approximanten eine konstante phasonische Verzerrung fest eingebaut wird, haben wir die Möglichkeit, über die Wahl des Approximanten die phasonische Verzerrung einzustellen.

2.6 Diskreter Orthogonalraum, minimale Einbettung

Wir haben den Orthogonalraum E^{\perp} definiert als den Komplementärraum des physikalischen Raums E^{\parallel} bezüglich des Hyperraums \mathbb{R}^d . Wählt man die Dimension d des Hyperraums zu groß, so schneidet ein Unterraum E^{disc} des Orthogonalraums das Hypergitter in einem Untergitter. Diesen Unterraum nennen wir diskreten Orthogonalraum. Den Unterraum des Orthogonalraums, der das Hypergitter wie der physikalische Raum nur im Ursprung schneidet, nennen wir phasonischen

2.7. DER POLARENKALKÜL

Orthogonalraum E^{phas} :

$$\mathbb{R}^d = \boldsymbol{E}^{\parallel} \oplus \boldsymbol{E}^{\perp} \tag{2.1}$$

$$\boldsymbol{E}^{\perp} = \boldsymbol{E}^{\text{phas}} \oplus \boldsymbol{E}^{\text{disc}}$$
(2.2)

In unserem bisherigen Beispiel der Projektion der Fibonacci-Kette besteht der Orthogonalraum nur aus dem phasonischen Unterraum. Verschiebungen entlang des phasonischen Orthogonalraums verursachen phasonische Flips (Abschnitt 2.4). Verschiebungen entlang des diskreten Orthogonalraums erzeugen Tilings verschiedener lokaler Isomorphieklassen.

Hat man, wie bei der Fibonacci-Kette, keinen diskreten Orthogonalraum, spricht man von minimaler Einbettung. Minimale Einbettung lässt sich erzeugen, indem man das Hypergitter in $E^{\parallel} \oplus E^{\text{phas}}$ projiziert. Dann hat man im Allgemeinen zwar ein komplexeres Gitter, muss aber bei den Orthogonalraumverschiebungen nicht mehr zwischen diskreter und phasonischer Richtung unterscheiden.

2.7 Der Polarenkalkül

Für die Berechnung vieler lokaler Eigenschaften eines Festkörpers braucht man Umgebungen. Wir verstehen unter einer Umgebung hier die Menge der Vertizes innerhalb einer Kugel mit einem gegebenen Radius um einen ausgezeichneten Vertex. Sitzen zum Beispiel Atome auf den Vertizes und ist die Wechselwirkung zwischen den Atomen in der Reichweite begrenzt, so kann man die potenzielle Energie eines Atoms mit Hilfe dieser Umgebung berechnen.

Um aus solchen lokalen Eigenschaften globale zu berechnen, wie zum Beispiel die potenzielle Energie eines Festkörpers aus der potenziellen Energie der einzelnen Atome, muss man nicht nur alle auftretenden Umgebungen kennen, sondern auch deren Häufigkeiten oder Dichten.

Betrachtet man nur Gitterpunkte, gibt es bei einem Kristall zu jedem Radius nur eine Umgebung, die Häufigkeit oder Dichte dieser Umgebung ist daher trivial zu berechnen. Bei einer quasiperiodischen Struktur ist



Abbildung 2.6: Polarenkalkül für die Sequenz *LL* in der Fibonacci-Kette im Bild des Projektionsformalismus (links) und der atomaren Hyperflächen (rechts).

die Zahl der Umgebungen zu einem gegebenen Radius endlich, solange man nur endlich viele unterschiedliche Tiles hat. Die Häufigkeit einer Umgebung lässt sich mit dem sogenannten Polarenkalkül [16] berechnen.

Wir betrachten in der Fibonacci-Kette die Abfolge LL und projizieren die beteiligten Hypergitterpunkte in den Orthogonalraum (Abbildung 2.6 links). Die Menge der drei Projektionen nennen wir \mathcal{M} . Da die Steigung des Parallelraums irrational ist, liegen die projizierten Hypergitterpunkte im Akzeptanzbereich homogen und dicht, und jedes Bild lässt sich eindeutig einem Hypergitterpunkt zuordnen. Das heißt, wenn wir \mathcal{M} innerhalb des Akzeptanzbereiches \mathcal{A} verschieben, ist die Menge der verschobenen Punkte $\mathcal{M} + u^{\perp}$ die Projektion einer Sequenz LL an einer anderen Stelle im Tiling. Die Menge $\mathcal{M}^* := \{ u^{\perp} | \mathcal{M} + u^{\perp} \subset \mathcal{A} \}$ aller Verschiebungen u^{\perp} , die die Menge \mathcal{M} im Akzeptanzbereich \mathcal{A} lässt, nennt man das \mathcal{A} -Polar von \mathcal{M} . Da jede Verschiebung von \mathcal{M} einer Realisierung von LL im Tiling entspricht, ist das Volumen von \mathcal{M}^* proportional zur relativen Häufigkeit der Sequenz LL. Im gezeigten Beispiel entspricht das *A*-Polar der Fläche des Akzeptanzbereiches unterhalb der Projektion von (2, 1). Das *A*-Polar eines einzelnen Vertex ist offensichtlich der Akzeptanzbereich \mathcal{A} . Damit ist die relative Häufigkeit von LL $|\mathcal{M}^*|/|\mathcal{A}|.$

Etwas anschaulicher ist der Polarenkalkül im Bild der atomaren Hyperflächen. In Abbildung 2.6 rechts projizieren wir die atomaren Hyperflächen aller an der Abfolge LL beteiligten Hypergitterpunkte in den Orthogonalraum. Da alle Vertizes zum Tiling gehören, schneidet jede atomare Hyperfläche den Parallelraum und somit liegt in jeder Projektion der Ursprung. Also muss der Schnitt aller projizierten Hyperflächen den Ursprung enthalten. Die Projektion einer Sequenz LL von einer anderen Stelle im Tiling ist gegenüber der gezeigten nur in Richtung des Orthogonalraums verschoben, aber so, dass der Schnitt aller projizierten Hyperflächen immer noch den Ursprung enthält. Damit entspricht dieser Schnitt dem \mathcal{A} -Polar des letzten Abschnitts. Wenn \mathcal{H}_i die atomaren Hyperflächen der beteiligten Vertizes sind, dann ist die relative Häufigkeit von $LL \mid \bigcap_i \pi^{\perp} \mathcal{H}_i | / |\mathcal{H}|.$

Der Polarenkalkül gilt nur für den aperiodischen Fall. Bei einem periodischen Approximanten liegen die Projektionen der Hypergitterpunkte in den Orthogonalraum nicht mehr dicht im Akzeptanzbereich. Auch ist die Projektion nicht mehr injektiv [9]. Bei dem in Abbildung 2.4 gezeigten Approximanten projizieren die Hypergitterpunkte innerhalb des Streifens auf sieben Punkte im Akzeptanzbereich. Hypergitterpunkte, die bezüglich der Periode des Approximanten äquivalent sind, projizieren auf den gleichen Punkt.

Streng genommen gelten also Ergebnisse, die mit dem Polarenkalkül abgeleitet worden sind, nur für phasonische Verzerrungen, die keine periodischen Strukturen erzeugen. Allerdings gibt es zu jeder phasonischen Verzerrung, die einen periodischen Approximanten erzeugt, in jeder Umgebung beliebig viele phasonische Verzerrungen, die aperiodische Konfigurationen erzeugen, sodass man erwarten kann, dass die Abhängigkeit der relativen Häufigkeiten von der phasonischen Verzerrung, die man über den Polarenkalkül gewinnt, auch für die Approximanten gilt, solange sie stetig ist. Zudem kann man zumindest für einfache Fälle die relativen Häufigkeiten in periodischen Approximanten direkt abzählen und so die Gültigkeit überprüfen.

2.8 Zweidimensionale dekagonale quasiperiodische Strukturen

2.8.1 Hypergitter

Welche quasiperiodische Struktur man durch den Projektionsformalismus erhält, hängt von der Wahl des Hypergitters, der Richtung des physikalischen Raums relativ zum Hypergitter und von der Wahl des Akzeptanzbereiches ab. Bei der Wahl des Hypergitters ist zunächst wichtig, dass es unter der gewünschten Punktsymmetrie invariant ist. Die minimale Dimension eines Gitters, das *n*-zählige Symmetrie aufweist, ist durch die Eulerfunktion gegeben [13, 1]. Unter den zweidimensionalen quasiperiodischen Strukturen sind die mit fünf-, acht-, zehn- und zwölfzähliger Symmetrie von besonderer Bedeutung, weil experimentell T-Phasen mit diesen Symmetrien gefunden wurden. Diese Symmetrien tauchen in Hypergittern ab Dimension vier auf.

Obwohl es vierdimensionale Gitter mit fünf- oder zehnzähliger Symmetrie gibt, beginnt man meist mit dem fünfdimensionalen hyperkubischen Gitter \mathbb{Z}^5 , da dieses eine offensichtliche fünfzählige Symmetrie gegeben durch die Permutation der kanonischen Koordinaten hat². Unter Punktsymmetriegruppen, die eine fünf- oder zehnzählige Drehung enthalten, zerfällt der fünfdimensionale Raum \mathbb{R}^5 in zwei zweidimensionale invariante Unterräume V_0 und V_1 sowie einen eindimensionalen V_2 . Die zweidimensionalen Unterräume V_0 und V_1 schneiden \mathbb{Z}^5 jeweils nur im Ursprung, während der Schnitt von V_2 und \mathbb{Z}^5 ein eindimensionales Untergitter (äquivalent zu $\mathbbm{Z})$ ist. Identifiziert man die oben beschriebene fünfzählige Drehung mit c_{10}^2 , so transformiert sich V_0 nach Γ_5 , also der Darstellung des Ortsraums, V_1 nach Γ_7 und V_2 nach Γ_4 (siehe Anhang A). Wir wählen deshalb V_0 als physikalischen Raum, damit ist $V_1 \oplus V_2$ der Orthogonalraum, V_1 der phasonische, V_2 der diskrete Orthogonalraum. Will man minimale Einbettung, so muss man den Hyperraum auf $V_0 \oplus V_1$ beschränken, als Hypergitter kann man entweder den Schnitt von \mathbb{Z}^5 mit $V_0 \oplus V_1$ wählen oder die Projektion von \mathbb{Z}^5 in $V_0 \oplus V_1$. Im ersten Fall erhält man das Wurzelgitter $\mathbb{A}_4 = \mathbb{Z}^5 \cap (V_0 \oplus V_1)$. Projiziert

 $^{^2}$ vergleichbar mit der Spiegelung an der Winkelhalbierenden für \mathbb{Z}^2 beziehungsweise mit der dreizähligen Drehung um die erste Raumdiagonale für \mathbb{Z}^3



Abbildung 2.7: Projektionen der Basisvektoren b_i (blau), e_i (schwarz) und a_i (rot) in Parallel- und Orthogonalraum.

man \mathbb{Z}^5 in den vierdimensionalen Hyperraum, so erhält man das duale Gitter von \mathbb{A}_4 , $\mathbb{A}_4^* = \pi_{(V_0 \oplus V_1)} \mathbb{Z}^5$. \mathbb{A}_4 ist demnach ein Untergitter seines dualen Gitters: $\mathbb{A}_4 \subset \mathbb{A}_4^*$.

Wir verwenden im Folgenden immer \mathbb{A}_4^* als Hypergitter, da wir mit diesem alle in dieser Arbeit behandelten quasiperiodischen Strukturen beschreiben können.

2.8.2 Basen

Seien $\{\tilde{e}_i | i = 0, ..., 4\}$ die kanonischen orthonormalen Basisvektoren des \mathbb{R}^5 beziehungsweise des \mathbb{Z}^5 . Dann bilden die Vektoren

$$a_i := \tilde{e}_i - \tilde{e}_{(i+1) \mod 5}$$
; $i = 0, ..., 4$ (2.3)

eine Basis³ des \mathbb{A}_4 . Entsprechend bilden die Vektoren

$$e_i := \tilde{e}_i - \frac{1}{5} \sum_j \tilde{e}_j \quad ; \quad i = 0, ..., 4$$
 (2.4)

eine Basis des \mathbb{A}_4^* .

Das Gitter \mathbb{A}_4^* zerfällt bezüglich \mathbb{A}_4 in fünf Translationsklassen T = 0, ..., 4. Zu welcher Translationsklasse ein Hypergittervektor gehört, lässt

³ Da \mathbb{A}_4 ein vierdimensionales Gitter ist, ist die Basis nicht minimal. Je vier der fünf Vektoren \mathbf{a}_i bilden eine minimale Basis. Das gleiche gilt für die Vektoren \mathbf{e}_i und das Gitter \mathbb{A}_4^* .

sich über dessen Koordinatensumme in der angegebenen Basis modulo 5 bestimmen.

$$\boldsymbol{r} = \sum_{i} \lambda_i \boldsymbol{e}_i \quad : \quad T(\boldsymbol{r}) = \left(\sum_{i} \lambda_i\right) \mod 5$$
 (2.5)

Neben der Gitterbasis $\{e_i\}$ verwenden wir für den Hyperraum \mathbb{R}^4 noch eine orthonormale symmetrieangepasste Basis $\{b_i\}$, deren erste zwei Vektoren den Parallelraum aufspannen ($V_0 = \langle b_0, b_1 \rangle$), die letzten zwei den Orthogonalraum ($V_1 = \langle b_2, b_3 \rangle$). In der Gitterbasis lauten diese Basisvektoren: ($\tau := \frac{\sqrt{5}+1}{2}$ Goldener Schnitt, $s := \sin \frac{2\pi}{5}$)

$$\boldsymbol{b}_0 = \frac{1}{2\sqrt{2}s} \left(\left(\boldsymbol{e}_0 - \boldsymbol{e}_1 \right) - \tau \left(\boldsymbol{e}_2 - \boldsymbol{e}_4 \right) \right)$$
(2.6)

$$\boldsymbol{b}_{1} = \frac{1}{\sqrt{2}} \Big(\tau \big(\boldsymbol{e}_{0} + \boldsymbol{e}_{1} \big) + \frac{1}{\tau} \big(\boldsymbol{e}_{2} + \boldsymbol{e}_{4} \big) \Big)$$
(2.7)

$$\boldsymbol{b}_2 = \frac{1}{2\sqrt{2}s} \Big(\tau \big(\boldsymbol{e}_0 - \boldsymbol{e}_1 \big) + \big(\boldsymbol{e}_2 - \boldsymbol{e}_4 \big) \Big)$$
(2.8)

$$\boldsymbol{b}_3 = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(-\frac{1}{\tau} (\boldsymbol{e}_0 + \boldsymbol{e}_1) - \tau (\boldsymbol{e}_2 + \boldsymbol{e}_4) \right)$$
(2.9)

Abbildung 2.7 zeigt die Projektionen der eingeführten Basisvektoren in Parallel- und Orthogonalraum.

Die Indizes der Basisvektoren sind grundsätzlich modulo 5 zu verstehen, der Einfachheit halber schreiben wir im Folgenden zum Beispiel e_{i+2} statt korrekt $e_{(i+2) \mod 5}$.

2.8.3 Das Tübinger Dreiecksmuster

Das Tübinger Dreiecksmuster [2] besteht aus spitzwinkligen und stumpfwinkligen gleichschenkligen Dreiecken mit Winkeln von 36° beziehungsweise 108° (Abbildung 2.8). Das Verhältnis der Seitenlängen ist der Goldene Schnitt τ . Man erhält es mit dem Projektionsformalismus, wenn man für die Punkte des \mathbb{A}_4^* der Translationsklasse T = 0 als Akzeptanzbereich ein Zehneck mit den Ecken $\pm (e_i^{\perp} + e_{i+2}^{\perp})$ wählt (Abbildung 2.8, rechts), für alle anderen Gitterpunkte einen leeren Akzeptanzbereich.



Abbildung 2.8: Tübinger Dreiecksmuster (links), vereinfachtes Tiling (Mitte) und Akzeptanzbereich (rechts).



Abbildung 2.9: Im Tübinger Dreiecksmuster sind die elementaren Flips der Trapezflip und der Flip in einer Raute (oben). Das vereinfachte Tiling wird durch den Trapezflip nicht verändert, aber beim Rautenflip können verschiedene Tiles beteiligt sein.

(Tatsächlich ist das Hypergitter hier also A_4 .) Aus der Konstruktion der Vertizes ist die Aufteilung in spitz- und stumpfwinklige Dreiecke jedoch noch nicht unmittelbar klar (obwohl lokal ableitbar). Häufig genügt für Betrachtungen das vereinfachte Tiling aus regelmäßigen Fünfecken, Trapezen und spitzwinkligen Dreiecken (Abbildung 2.8, Mitte), das man erhält, wenn man neben den kurzen Seiten der Dreiecke nur diejenigen langen einzeichnet, die eindeutig aus den Nächste-Nachbar-Vertizes hervorgehen.

Die elementaren Flips des Tübinger Dreiecksmusters, die bei kleinen phasonischen Verschiebungen auftreten, sind der Trapezflip und der Rautenflip (Abbildung 2.9, oben). Beim Trapezflip springt nur eine Seite, kein Vertex. Deshalb ändert er das vereinfachte Tiling nicht. Er fin-



Abbildung 2.10: Penrose-Rhomben-Tiling und Akzeptanzbereiche für T = 1 bis T = 4.



Abbildung 2.11: Die Elementarflips des Penrose-Rhomben-Tilings im spitzwinkligen und im stumpfwinkligen Hexagon.

det dort entweder im Trapez oder im Fünfeck statt, die Diagonalen des Trapezes gehören beide nicht zum Tiling. Beim Rautenflip springt ein Vertex. Deshalb ändert er auch das vereinfachte Tiling. Dort können unterschiedliche Tiles am Flip beteiligt sein. In Abbildung 2.9 unten ist exemplarisch ein Rautenflip gezeigt, bei dem aus einem Fünfeck, einem Trapez und vier Dreiecken drei Trapeze und drei Dreiecke werden. Im vereinfachten Tiling bleibt also im Allgemeinen bei einem Flip das Verhältnis der Tiles nicht erhalten. Am einfachsten behandelt man den Flip im vereinfachten Tiling, indem man nur den Vertex springen lässt und das Tiling lokal rekonstruiert.

2.8.4 Das Penrose-Tiling

Das zweidimensionale Penrose-Tiling [28] ist in mehreren Varianten bekannt. Wir beschränken uns hier auf das populärste, das Penrose-Rhomben-Tiling, bestehend aus zwei Sorten Rhomben mit spitzen Winkeln von 36° und 72° (Abbildung 2.10). Die Vertizes des Penrose-Tilings sind Projektionen der Hypergitterpunkte der Translationsklassen T = 1



Abbildung 2.12: Dekoration der Penrose-Rauten für ein Binärtiling. Die großen Atome A sind schwarz dargestellt. Die Positionen der kleinen Atome B zerfallen in zwei Klassen und werden deshalb grün und blau dargestellt. Physikalisch sollen sie aber nicht unterscheidbar sein.

bis T = 4. T = 1 und T = 4 haben als Akzeptanzbereiche Fünfecke, deren Ecken die Einheitsvektoren des Hypergitters \mathbb{A}_4^* beziehungsweise deren Inverse sind. T = 2 und T = 3 haben ebenfalls Fünfecke als Akzeptanzbereiche, deren Seiten um den Goldenen Schnitt τ länger sind (Abbildung 2.10 rechts).

Die elementaren Flips des Penrose-Rhomben-Tilings finden in zwei Hexagonen statt, einem spitzwinkligen bestehend aus zwei schmalen Rhomben und einer dicken Rhombe und einem stumpfwinkligen, bestehend aus zwei dicken und einer schmalen Rhombe (Abbildung 2.11).

2.9 Die Binärtilings

Die Binärtilings sind eine Familie von zweidimensionalen Strukturen bestehend aus zwei Atomsorten. Die großen Atome nennen wir im Folgenden A, die kleinen B. Alle Binärtilings lassen sich als Tiling mit den zwei Penroserauten darstellen. Dabei werden die dicken Rauten an den spitzen Ecken mit kleinen Atomen dekoriert, an den stumpfen Ecken mit großen. Die kleine Raute hat große Atome an den spitzen Ecken und kleine an den stumpfen Ecken (Abbildung 2.12). Als Anlegeregel dient neben der lückenlosen und überlappungsfreien Bedeckung der Ebene zusätzlich die konsistente Dekoration der Ecken. Wenn also zum Beispiel vier Rauten sich eine Ecke teilen, so muss diese Ecke in allen vier Rauten mit der gleichen Atomsorte dekoriert sein. Die so entstehenden Tilings lassen sich in den Hyperraum \mathbb{A}_4^* heben. Die großen Atome kommen dabei auf Hypergitterpunkte der Translationsklassen T = 1und T = 4. Um dies darzustellen, sind im Folgenden die kleinen Atome



Abbildung 2.13: Mögliche lokale Umgebungen kleiner Atome.

mit T = 1 grün dargestellt, die mit T = 4 blau. Sie sollen aber physikalisch nicht unterscheidbar sein.

2.9.1 Hexagon-Boot-Stern-Tiling

Für die kleinen Atome gibt es im Binärtiling drei symmetrieinäquivalente lokale Umgebungen, ein Stern bestehend aus fünf dicken Rauten, ein Boot bestehend aus drei dicken und einer dünnen Raute sowie ein Hexagon bestehend aus einer dicken und zwei dünnen Rauten (Abbildung 2.13). Der Stern kommt für Atome mit T = 1 nur in der einen gezeigten Orientierung vor, die Boote und Hexagone jeweils in fünf Orientierungen (in der gezeigten und in um Vielfache von 72° gedrehten). Atome mit T = 4 haben die gleichen lokalen Umgebungen, allerdings an der Horizontalen gespiegelt, also in den übrigen zehnzähligen Orientierungen. Betrachtet man die lokalen Umgebungen der kleinen Atome einer Translationsklasse als neue Tiles, so erhält man ein Hexagon-Boot-Stern-Tiling (Abbildung 2.14). Die gezeigten Kristalle aus Hexagonen (AB_2) beziehungsweise aus Booten (A_2B_2) sind die kleinstmöglichen Kristalle unter den Binärtilings mit drei beziehungsweise vier Atomen in der Einheitszelle und begrenzen zugleich den Stöchiometriebereich der Binärtilings.

2.9.2 Mikulla-Roth-Tiling

Wenn man die Vertizes des Tübinger Dreiecksmusters (Abschnitt 2.8.3) mit großen Atomen dekoriert und die Umkreismittelpunkte der spitzwinkligen Dreiecke mit kleinen Atomen (Abbildung 2.15), so erhält man ein quasikristallines Binärtiling, das Mikulla-Roth-Tiling [38]. Im vereinfachten Tübinger Dreiecksmuster werden die Umkreismittelpunkte aller Tiles mit kleinen Atomen dekoriert.



Abbildung 2.14: Binärtiling gefärbt als Hexagon-Boot-Stern-Tiling. Als Tiles dienen die lokalen Umgebungen der Atome mit T = 1. Gezeigt sind ein Kristall aus Hexagonen, ein Kristall aus Booten und ein Approximant einer quasikristallinen Konfiguration.



Abbildung 2.15: Dekoration des Tübinger Dreiecksmusters (oben) beziehungsweise des vereinfachten Tübinger Dreiecksmusters (unten) für das Mikulla-Roth-Tiling.

Man kann das Mikulla-Roth-Tiling auch direkt mit der Methode der atomaren Hyperflächen erhalten. Die atomare Hyperfläche der großen Atome ist das Zehneck, das auch Akzeptanzbereich des Tübinger Dreiecksmusters ist, und wird an die Hypergitterpunkte der Translationsklasse



Abbildung 2.16: Atomare Hyperflächen für das Mikulla-Roth-Tiling.



Abbildung 2.17: Dekoration des Penrose-Rhomben-Tilings für das Lançon-Billard-Tiling.

T = 0 angeheftet. Die kleinen Atome haben zwei Fünfsterne als atomare Hyperflächen, die an die Hypergitterpunkte der Translationsklassen T = 1 beziehungsweise T = 4 angeheftet werden (Abbildung 2.16).

2.9.3 Gähler-Baake-Tiling

Das zuerst beschriebene quasikristalline Binärtiling beruht auf der Dekoration des Penrose-Rhomben-Tilings und wurde von Lançon et al. vorgeschlagen [21]. Die Vertizes des Penrose-Tilings werden mit großen Atomen dekoriert, zusätzlich kommen in die schmalen Rauten zwei kleine Atome und in die dicken Rauten zwei kleine und ein großes Atom (Abbildung 2.17). Die Dekoration der dicken Raute bricht die vertikale Spiegelsymmetrie. Dadurch kann man jede dicke Raute auf zwei Arten dekorieren. Bei falscher Wahl kann es aber zu Defekten im resultierenden Binärtiling kommen. In [21] erfolgte die Wahl der Dekoration zufällig, später gab es verschiedene Vorschläge, die Dekoration eindeutig zu machen und Defekte zu vermeiden [22, 8]. Wir folgen der Dekoration von Gähler et al. [8] und nennen das resultierende Binärtiling Gähler-Baake-Tiling.



Abbildung 2.18: Flips im Mikulla-Roth-Tiling.



Abbildung 2.19: Flips im Gähler-Baake-Tiling.

2.9.4 Flips

Die elementaren Flips der quasikristallinen Binärtilings lassen sich direkt aus den Flips der zugrunde liegenden Tilings ableiten. Das Trapez des Tübinger Dreiecksmusters wird symmetrisch dekoriert, weshalb der Trapezflip keine Änderung des Mikulla-Roth-Tilings bewirkt (Abbildung 2.18). Der Flip in der Raute aus zwei spitzwinkligen und zwei stumpfwinkligen Dreiecken bewirkt im Mikulla-Roth-Tiling den sogenannten Oktagonflip, bei dem in einem Oktagon ein großes und zwei kleine Atome ihre Positionen ändern (Abbildung 2.18).

Das spitzwinklige Hexagon des Penrose-Rhomben-Tilings ist im Gähler-Baake-Tiling symmetrisch dekoriert, also induziert dieser Flip des Penrose-Tilings keinen Flip im Binärtiling (Abbildung 2.19). Der Flip im stumpfwinkligen Hexagon bewirkt im Gähler-Baake-Tiling den beschriebenen Oktagonflip (Abbildung 2.19).

Im zufällig dekorierten Lançon-Billard-Tiling gibt es für das spitzwinklige Hexagon neben der Dekoration des Gähler-Baake-Tilings eine weitere. Im stumpfwinkligen Hexagon gibt es drei weitere mögliche Dekorationen, von denen zwei symmetrieäquivalent sind und eine zu einem Defekt des Binärtilings führt. Es bleiben zwei neue Flips, die sich aber durch Mehrfachanwendung des Oktagonflips beschreiben lassen. Also

KAPITEL 2. QUASIKRISTALLE



Abbildung 2.20: Der Oktagonflip ist der Elementarflip in allen quasikristallinen Binärtilings.

haben alle hier vorgestellten quasikristallinen Binärtilings als Elementarflip nur den Oktagonflip (Abbildung 2.20).

2.9.5 Supertiling

Sowohl das Mikulla-Roth-Tiling als auch das Gähler-Baake-Tiling sind dominiert von zehnzähligen Umgebungen großer Atome. Diese treten in dem charakteristischen Abstand $2s\tau^2$ zueinander auf. Die beiden quasikristallinen Binärtilings sind mit bloßem Auge kaum zu unterscheiden. Wir führen deshalb ein Supertiling ein, indem wir die großen Atome verbinden, die mit zehn, sieben oder vier schmalen Rauten umgeben sind und zueinander einen Abstand von $2s\tau^2$ haben. Für das Mikulla-Roth-Tiling entsteht ein Supertiling aus dicken und schmalen Rhomben sowie einer zweizackigen Krone (Abbildung 2.21, links), für das Gähler-Baake-Tiling ist das Supertiling ein Penrose-Rhomben-Tiling (Abbildung 2.21, rechts). Das Supertiling hilft nicht nur, die beiden quasikristallinen Binärtilings auseinander zu halten, sondern auch zu beurteilen, wie nahe ein Binärtiling an einer quasikristallinen Struktur ist (siehe Kapitel 5).

2.10 Matching-Rules

Unter Matching-Rules versteht man Anlegeregeln zur Erzeugung von Tilings. Einfache Anlegeregeln können eine Vielzahl unterschiedlicher Tilings erzeugen, wie wir am Beispiel der Binärtilings gesehen haben. Wir interessieren uns hier für perfekte Matching-Rules. Diese erzwingen Tilings einer einzigen lokalen Isomorphieklasse.



Abbildung 2.21: Mikulla-Roth-Binärtiling (links) mit Supertiling bestehend aus den zwei Penroserauten und einer zweizackigen Krone. Beim Gähler-Baake-Tiling (rechts) ist das Supertiling ein Penrose-Rhomben-Tiling.

Wir wollen zunächst die Definition der lokalen Isomorphie (Abschnitt 2.3) nach Levitov [25] etwas formaler fassen. Die Menge der Tiles eines Tilings, die mit einer Umgebung $B_{R,r}$ mit Radius R um den Vertex r überlappen, nennen wir eine R-Karte. Wenn das Tiling aus endlich vielen unterschiedlichen Tiles besteht, gibt es für einen gegebenen Radius R nur endlich viele R-Karten. Alle R-Karten bilden zusammen den R-Atlas. Dann heißen zwei Tilings lokal isomorph, wenn ihre R-Atlanten für alle $R \geq 0$ übereinstimmen.

Wir sind insbesondere an Tilings interessiert, bei denen es genügt, die R-Atlanten bis zu einem Radius $R_{\rm mr}$ anzugeben, um die lokale Isomorphie festzustellen. Tilings mit dieser Eigenschaft heißen lokal charakterisierbar. Die perfekten Matching-Rules sind dann eine endliche Liste von erlaubten Umgebungen, nämlich der $R_{\rm mr}$ -Atlas. Den Radius $R_{\rm mr}$ nennt man Matching-Rules-Radius.

Die in dieser Arbeit vorgestellten zweidimensionalen quasiperiodischen Strukturen sind alle lokal charakterisierbar, haben also einen endlichen Matching-Rules-Radius (unser eindimensionales Beispiel, die Fibonacci-Kette, nicht).



Abbildung 2.22: Bei einer homogenen phasonischen Verschiebung flippen alle Oktagone auf einer Linie.

Bei Kristallen entsprechen perfekte Matching-Rules lokalen Wachstumsregeln. Dies ist für Quasikristalle in der Regel nicht der Fall [17]. Man kann mit den perfekten Matching-Rules zwar überprüfen, ob ein gegebenes Tiling zu der lokalen Isomorphieklasse gehört, der Versuch, unter Beachtung der erlaubten Umgebungen einen Quasikristall wachsen zu lassen, führt aber im Allgemeinen zu Defekten.

2.10.1 Matching Rules im Mikulla-Roth-Tiling

Bei einer homogenen phasonischen Verschiebung finden im Mikulla-Roth-Tiling Oktagonflips statt (Abschnitt 2.9.4), und zwar so, dass ein Tiling der gleichen lokalen Isomorphieklasse entsteht (Abschnitt 2.4). Die flipbaren Oktagone liegen auf Linien in fünf Richtungen (Abbildung 2.22). Alle Oktagone auf einer Linie haben dieselbe Orientierung. Bei einer homogenen Verschiebung flippen alle Oktagone einer Linie oder keines. Auf wie vielen und auf welchen Linien die Oktagone flippen, hängt von Richtung und Betrag der Verschiebung ab. In Abbildung 2.22


Abbildung 2.23: Die flipbaren Oktagone auf einer Linie kommen in drei Abständen vor. Der größte Abstand bestimmt den Matching-Rules-Radius (rechts).

sind alle Oktagone eingefärbt, die bei der phasonischen Verschiebung gegenüber der Ursprungskonfiguration gesprungen sind. Die Oktagone treten auf den Linien in drei Abständen im Verhältnis 1 : τ : τ^2 auf (Abbildung 2.23).

Legt man eine phasonische Verzerrung an, finden die Oktagonflips nur auf einer Teilstrecke der jeweiligen Linie statt [18]. Außerhalb dieser Strecke finden auf der einen Seite keine Flips statt, auf der anderen Mehrfachflips. Bei einer kleinen phasonischen Verzerrung besteht die Konfiguration hauptsächlich aus im Quasikristall erlaubten Umgebungen. Die einzigen verbotenen Umgebungen sind die Enden der Flipstrecken, die sogenannten Jags, um die zwei Oktagone auf einer Linie liegen, die unterschiedliche Orientierung haben. In Abbildung 2.24 sind alle Oktagone, die gegenüber der Ursprungskonfiguration gesprungen sind, blau eingefärbt, die, die nicht gesprungen sind, aber mit den geflippten auf einer Linie liegen, grün.

Die Matching-Rules müssen zwischen der verbotenen und der erlaubten Orientierung zweier Oktagone in allen drei Abständen unterscheiden können. Es muss also eine $R_{\rm mr}$ -Karte geben, die beide Oktagone



Abbildung 2.24: Bei einer phasonischen Verzerrung springen die Oktagone nur auf einer Teilstrecke der Linien. Dadurch entstehen Oktagone verschiedener Orientierung auf einer Linie.

im größten Abstand enthält (Abbildung 2.23, rechts). Dadurch ist der Matching-Rules-Radius des Mikulla-Roth-Tilings definiert ($R_{\rm mr} \approx 8$) [8].

Der Matching-Rules-Radius des Gähler-Baake-Tilings wurde ebenfalls in [8] abgeleitet. Er ist deutlich kleiner ($R_{\rm mr} \approx 5$) als der des Mikulla-Roth-Tilings.

2.11 Random-Tilings

In den vorangegangenen Kapiteln haben wir uns ausschließlich mit quasiperiodischen Gittern beschäftigt, die eine quasiperiodische Punktsymmetrie und als Beugungsbild Delta-Funktionen haben, also der Definition der Quasikristalle genügen. Elser [5] und Henley [10] haben gezeigt, dass auch Zufallsparkettierungen aus den Tiles der quasiperiodischen Gitter im Ensemble-Mittel diese Eigenschaften aufweisen. Wir verwenden für diese Zufallsparkettierungen im Folgenden die international übliche Bezeichnung Random-Tilings.

2.11.1 Definition

Ein Random-Tiling-Ensemble ist das Ensemble aller Tilings, die sich durch zufälliges lückenloses und überlappungsfreies Aneinanderlegen einer Menge von Tiles erzeugen lassen. Wir betrachten im Folgenden Random-Tilings, die aus denselben Tiles bestehen wie eine quasiperiodische Struktur. Ein der Fibonacci-Kette entsprechendes Random-Tiling ist also jede denkbare Folge der Abstände S und L, also beispielsweise die Folge aus nur kurzen Abständen SSSS..., aus nur langen Abständen LLLL... sowie die Fibonacci-Kette selbst. Zu den Random-Tilings, die aus den Penrose-Rauten erzeugt werden, gehören Kristalle aus nur dicken oder nur dünnen Rauten, das Penrose-Tiling selbst und alle anderen denkbaren Parkettierungen bestehend aus diesen Rauten. Insbesondere gehören auch alle Binärtilings zu diesem Ensemble. Aber auch die Binärtilings selbst bilden ein Random-Tiling-Ensemble. Hier muss neben der Parkettierungsbedingung noch die Bedingung der richtigen atomaren Dekoration erfüllt sein (Abschnitt 2.9). Es gibt aber trotz dieser Einschränkung genügend Binärtilings um ein Random-Tiling-Ensemble zu bilden [11].

2.11.2 Hebung in den Hyperraum

Durch die Parkettierungsbedingung bleibt auch bei den Random-Tilings die Bindungsorientierungsordnung erhalten. Legt man beispielsweise Penroserauten zufällig aneinander, gibt es für die Kanten nur zehn mögliche Orientierungen. Diese kann man wie beim perfekten Penrose-Tiling mit den Projektionen der Hypergitter-Einheitsvektoren in den Parallelraum identifizieren. Damit kann man jeden Vertex des Random-Tilings eindeutig in das Hypergitter heben. Da benachbarte Vertizes im Random-Tiling auf benachbarte Hypergitterpunkte gehoben werden, stellt das gehobene Random-Tiling wie das quasiperiodische Tiling eine Hyperfläche dar (rote Linie in Abbildung 2.25). Allerdings liegt diese



Abbildung 2.25: Zwei Random-Tilings mit gleicher globaler phasonischer Verzerrung wie der Approximant in Abbildung 2.4.

für das Random-Tiling nicht mehr innerhalb eines Streifens um einen Schnittraum, sondern ist beliebig rau.

2.11.3 Globale phasonische Verzerrung

Die durchschnittliche Steigung der Hyperfläche definiert eine globale phasonische Verzerrung $\bar{\chi}$. Die Hyperebene $E^{\bar{\chi}}$ zur globalen phasonischen Verzerrung entspricht dem Schnittraum E^{cut} bei den perfekten Quasikristallen (vergleiche Abbildungen 2.5 und 2.25). Besteht das Tiling aus nur zwei symmetrieinäquivalenten Tiles mit irrationalem Volumenverhältnis, so bestimmt die globale phasonische Verzerrung das Verhältnis der Häufigkeiten dieser Tiles. Das kann man sich leicht klar machen, wenn man eine globale phasonische Verzerrung betrachtet, die einen periodischen Approximanten erzeugt. Dann ist die Zahl der Tiles pro Einheitszelle ganzzahlig und die Summe der Tile-Volumina muss das Volumen der Einheitszelle ergeben. Damit spielt die globale phasonische Verzerrung die Rolle einer Konzentration. Das Random-Tiling-Ensemble ist also großkanonisch. Betrachtet man dagegen nur die Zustände zu einer festen globalen phasonischen Verzerrung, erhält man ein kanonisches Ensemble. Abbildung 2.25 zeigt zwei Random-Tilings mit der gleichen globalen phasonischen Verzerrung wie der Fibonacci-Ketten-Approximant in Abbildung 2.25. Alle Random-Tilings zu dieser globalen phasonischen Verzerrung haben fünf L- und zwei S-Tiles.

2.11.4 Flips

Im perfekt quasiperiodischen Tiling haben wir die Flips immer als streng korreliert betrachtet. Mit einer konstanten phasonischen Verschiebung gelangt man durch unendlich viele korrelierte Flips zu einem lokal isomorphen Tiling. Entsprechend gelangt man mit einer konstanten phasonischen Verzerrung über unendlich viele Flips zum Beispiel zu einem periodischen Approximanten. Wenn die Flips leicht anregbare Freiheitsgrade sind, werden sie bei höheren Temperaturen auch unkorreliert stattfinden. Wenn es möglich ist, mit vielen hintereinander ausgeführten unkorrelierten Flips vom quasiperiodischen Tiling zu jedem Zustand des Random-Tiling-Ensembles zu gelangen, entspricht das Random-Tiling-Modell der Hochtemperaturphase des quasiperiodischen Modells.

Wir gehen im Folgenden von einem kanonischen Ensemble zu einer festen globalen phasonischen Verzerrung aus, die einen Approximanten erzeugt. (Für das gesamte großkanonische Ensemble bräuchte man als Prozess neben den Flips zumindest noch die Erzeugung und Vernichtung der verschiedenen Tiles.) Für die zur Fibonacci-Kette gehörenden Random-Tilings kann man sich leicht klar machen, dass durch Mehrfachanwendung des $LS \leftrightarrow SL$ -Flips (siehe Abschnitt 2.4) ein L Abstand durch einen endlichen Kristall aus S Abständen wandern kann und umgekehrt. Damit kann man jede periodische Struktur aus L und S Abständen mit dem phasonischen Flip so umordnen, dass zum Beispiel alle kurzen Abstände links, alle langen rechts sind und somit gibt es zwischen zwei Zuständen mit denselben periodischen Randbedingungen immer einen Weg durch Hintereinanderausführung des Elementarflips. In ähnlicher Weise wurde dies für Rhomben-Tilings wie die Random-Tilings des Penrose-Rhomben-Tiling gezeigt [37]. Für die Binärtilings und den Oktagonflip (Abbildung 2.20) wurde diese Eigenschaft noch nicht gezeigt, ihr Gültigkeit wird aber allgemein angenommen [35, 37].

2.11.5 Entropie

Henley [11] stellte für Random-Tilings zwei Random-Tiling-Hypothesen auf:

(i) Die Entropiedichte hat bei der globalen phasonischen Verzerrung $\bar{\chi}=0$ ihr Maximum.

(ii) In der Nähe von $\bar{\chi} = 0$ ist die Entropiedichte quadratisch in der globalen phasonischen Verzerrung.

Diese Hypothesen können für einfache Systeme bewiesen werden [11] und wurden für komplexere durch Monte-Carlo-Simulationen verifiziert [37, 36, 14].

Ist ein Random-Tiling-Ensemble rein entropiestabilisiert, hat es die globale phasonische Verzerrung $\bar{\chi} = 0$.

2.11.6 Symmetrie

Wir wollen die Symmetrie eines Ensembles so definieren, dass eine Symmetrieoperation auf einen Zustand einen Zustand des gleichen Ensembles mit gleichem statistischen Gewicht erzeugt.

Für die globale phasonische Verzerrung $\bar{\chi} = 0$ ist die Hyperebene $E^{\bar{\chi}}$ ein symmetrieinvarianter Unterraum des Hyperraums, nämlich der physikalische Raum. Wendet man eine Symmetrieoperation der quasikristallinen Symmetriegruppe auf die Hyperfläche eines Zustands zu $\bar{\chi} = 0$ an, hat die Bild-Hyperfläche wieder die globale phasonische Verzerrung $\bar{\chi} = 0$. Damit haben die Zustände zu $\bar{\chi} = 0$ die gleiche Symmetriegruppe wie der Quasikristall.

Ein entropiestabilisiertes Random-Tiling-Ensemble hat also quasikristalline Symmetrie. Kapitel 3

Elastizitätstheorie der Quasikristalle

3.1 Die klassische Elastizitätstheorie

In der klassischen Kontinuumsmechanik unterscheidet man grundsätzlich zwischen zwei Koordinatensystemen. Die räumlichen oder Eulerschen Koordinaten x sind fest im Raum verankert. Dagegen sind die materiellen oder Lagrangeschen Koordinaten $\boldsymbol{\xi}$ mit der Materie verbunden. Ein bestimmtes Stück Materie hat also eine feste Lagrangesche Koordinate $\boldsymbol{\xi}$. Obwohl die materiellen Koordinaten im Prinzip beliebige Marken sind, wählt man normalerweise eine Referenzkonfiguration zu einer Zeit t_0 , zu der die Eulerschen Koordinaten gleich den Lagrangekoordinaten sind und diese somit definieren ($\boldsymbol{\xi} := \boldsymbol{x}(t_0)$). Für die Elastizitätstheorie ist es zudem sinnvoll, als Referenzkonfiguration einen spannungsfreien Zustand zu wählen. Die räumlichen Koordinaten $\boldsymbol{x}(\boldsymbol{\xi},t)$ lassen sich dann als Funktion der materiellen Koordinaten und der Zeit ausdrücken, umgekehrt auch die materiellen Koordinaten $\boldsymbol{\xi}(\boldsymbol{x},t)$ als Funktion der Eulerkoorinaten und der Zeit. Während zum Beispiel in der Fluiddynamik üblicherweise abgeleitete Größen als Funktionen von Eulerkoordinaten und der Zeit angegeben werden, bezieht man sich in der Elastizitätstheorie in der Regel auf die materiellen Koordinaten.

Die Verschiebung ist definiert als der Differenzvektor zwischen der Eulerund der Lagrangekoorinate:

$$\boldsymbol{u}(\boldsymbol{\xi}, t) := \boldsymbol{x}(\boldsymbol{\xi}, t) - \boldsymbol{\xi} \tag{3.1}$$

Der Deformationsgradient ist die Ableitung der Eulerkoordinaten nach den Lagrangeschen:

$$F_{ij}(\boldsymbol{\xi}, t) := \frac{\partial x_i(\boldsymbol{\xi}, t)}{\partial \xi_j}$$
(3.2)

Der Deformationsgradient ist $\mathbf{1}$, wenn keine Deformation vorliegt. Ein besseres Maß für Verzerrungen scheint deshalb der Verschiebungsgradi-

ent δF zu sein, der **0** ist, wenn keine Deformation vorliegt:

$$\delta \boldsymbol{F} := \boldsymbol{F} - \boldsymbol{1} \tag{3.3}$$

$$\delta F_{ij}(\boldsymbol{\xi}, t) = \frac{\partial u_i(\boldsymbol{\xi}, t)}{\partial \xi_j} \tag{3.4}$$

Allerdings beinhaltet der Verschiebungsgradient neben Verzerrungen auch Rotationen. Als Maß für Verzerrungen dient deshalb der Greensche Verzerrungstensor ε . Dieser ist definiert über die Differenz des Quadrats eines infinitesimalen Abstandes und der entsprechenden Größe in der Referenzkonfiguration:

$$\langle d\boldsymbol{x}, d\boldsymbol{x} \rangle - \langle d\boldsymbol{\xi}, d\boldsymbol{\xi} \rangle = \left\langle d\boldsymbol{\xi}, \left(\delta \boldsymbol{F} + \delta \boldsymbol{F}^{\mathrm{t}} + \delta \boldsymbol{F}^{\mathrm{t}} \delta \boldsymbol{F} \right) d\boldsymbol{\xi} \right\rangle$$

=: $\langle d\boldsymbol{\xi}, 2\varepsilon \, d\boldsymbol{\xi} \rangle$ (3.5)

Verzerrt man Festkörper im elastischen Bereich, so bleiben benachbarte Punkte benachbart, es gilt also:

$$\forall i, j: \qquad \left| \frac{\partial u_i}{\partial \xi_j} \right| \ll 1$$
 (3.6)

Damit können wir für den Greenschen Verzerrungstensor die geometrische Linearisierung anwenden, bei der der quadratische Term im Verschiebungsgradienten vernachlässigt wird:

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial \xi_j} + \frac{\partial u_j}{\partial \xi_i} \right) \tag{3.7}$$

Verzerrungen verursachen in einem Festkörper innere Spannungen σ . In linearer Näherung gilt für die Abhängigkeit der Spannung von der Verzerrung das Hookesche Gesetz:

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} \varepsilon_{kl} \tag{3.8}$$

Für die freie elastische Energiedichte f gilt bei konstanter Temperatur:

$$df = \sigma_{ij} d\varepsilon_{ij} \tag{3.9}$$

Integriert erhält man mit dem Hookeschen Gesetz:

$$f = \frac{1}{2} C_{ijkl} \varepsilon_{ij} \varepsilon_{kl} \tag{3.10}$$

Der 4-Tensor C_{ijkl} hat im dreidimensionalen 81 Komponenten, im zweidimensionalen 16. Durch die Symmetrie von ε und wegen (3.10) sind maximal 21 beziehungsweise 6 dieser Komponenten unabhängig. Je nach Symmetrie des Festkörpers reduziert sich die Zahl der unabhängigen Komponenten weiter, im isotropen Fall hat man zum Beispiel nur zwei unabhängige Komponenten, die üblicherweise durch die Lamekonstanten λ und μ angegeben werden.

3.2 Erweiterung der Elastizitätstheorie für Quasikristalle

Der Konstruktion quasiperiodischer Strukturen folgend definieren wir eulersche und lagrangesche Koordinaten im *d*-dimensionalen Hyperraum. Ihre Projektionen in den Parallel- oder Orthogonalraum nennen wir kurz $\boldsymbol{\xi}^{\parallel} = \boldsymbol{\pi}^{\parallel} \boldsymbol{\xi}, \, \boldsymbol{\xi}^{\perp} = \boldsymbol{\pi}^{\perp} \boldsymbol{\xi}, \, \boldsymbol{x}^{\parallel} = \boldsymbol{\pi}^{\parallel} \boldsymbol{x}, \, \boldsymbol{x}^{\perp} = \boldsymbol{\pi}^{\perp} \boldsymbol{x}$. Damit werden auch die abgeleiteten Größen wie etwa die Verschiebung \boldsymbol{u} im Hyperraum beschrieben. Allerdings verlangen wir, dass sie nur von der Parallelraumkomponente $\boldsymbol{\xi}^{\parallel}$ der Lagrangekoordinate abhängen, da die Orthogonalraumkomponente nur der Konstruktion dient und physikalische Eigenschaften nicht beeinflussen soll. Für die Verschiebung gilt dann:

$$\boldsymbol{u}(\boldsymbol{\xi}^{\parallel},t) = \boldsymbol{x}(\boldsymbol{\xi}^{\parallel},t) - \boldsymbol{\xi}$$
(3.11)

Deformations- und Verschiebungsgradient sind wie in der klassischen Elastizitätstheorie definiert¹:

$$F_{\alpha\beta} = \frac{\partial x_{\alpha}}{\partial \xi_{\beta}}, \quad \delta F_{\alpha\beta} = \frac{\partial u_{\alpha}}{\partial \xi_{\beta}}$$
(3.12)

¹ Wir verwenden im Folgenden griechische Buchstaben für Indizes, die über die Dimension d des Hyperraums laufen, lateinische für Indizes, die über die Dimension n des Parallel- oder Orthogonalraums laufen.

Beide zerfallen in Blockmatrizen, die wir wie folgt bezeichnen:

$$\boldsymbol{F} = \begin{pmatrix} \boldsymbol{F}^{\parallel,\parallel} & \boldsymbol{0} \\ \boldsymbol{F}^{\parallel,\perp} & \boldsymbol{1} \end{pmatrix}, \qquad F_{ij}^{\parallel,\parallel} := \frac{\partial x_i^{\parallel}}{\partial \xi_i^{\parallel}}, \qquad F_{ij}^{\perp,\parallel} := \frac{\partial x_i^{\perp}}{\partial \xi_i^{\parallel}} \quad (3.13)$$

$$\delta \boldsymbol{F} = \begin{pmatrix} \delta \boldsymbol{F}^{\parallel,\parallel} & \boldsymbol{0} \\ \delta \boldsymbol{F}^{\parallel,\perp} & \boldsymbol{0} \end{pmatrix}, \quad \delta F_{ij}^{\parallel,\parallel} := \frac{\partial u_i^{\parallel}}{\partial \xi_j^{\parallel}}, \quad \delta F_{ij}^{\perp,\parallel} := \frac{\partial u_i^{\perp}}{\partial \xi_j^{\parallel}} \quad (3.14)$$

Den erweiterten Greenschen Verzerrungstensor nennen wir $\tilde{\eta}$. Er ist analog zum klassischen Greenschen Verzerrungstensor über (3.5) definiert. Mit (3.14) ergibt sich unter Berücksichtigung der geometrischen Linearisierung (3.6):

$$\tilde{\boldsymbol{\eta}} = \begin{pmatrix} \boldsymbol{\varepsilon} & \mathbf{0} \\ \boldsymbol{\chi} & \mathbf{0} \end{pmatrix}, \quad \varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \frac{\partial u_i^{\parallel}}{\partial \xi_j^{\parallel}} + \frac{\partial u_j^{\parallel}}{\partial \xi_i^{\parallel}} \end{pmatrix}, \quad \chi_{ij} := \frac{\partial u_i^{\perp}}{\partial \xi_j^{\parallel}} \quad (3.15)$$

Der verallgemeinerte Greensche Verzerrungstensor besteht also aus dem klassischen Greenschen Verzerrungstensor ε , den wir hier phononische Verzerrung nennen, und der sogenannten phasonischen Verzerrung χ . Die phasonische Verzerrung ist im Gegensatz zur phononischen nicht symmetrisch, da hier Verschiebung und Lagrangekoordinate aus verschiedenen Räumen stammen und sich daher auch unterschiedlich transformieren. Im Folgenden verwenden wir als verallgemeinerte Verzerrung die $d \times n$ -dimensionale Matrix η , die nur die Komponenten von $\tilde{\eta}$ enthält, die im Allgemeinen nicht null sind:

$$\boldsymbol{\eta} := \left(\begin{array}{c} \boldsymbol{\varepsilon} \\ \boldsymbol{\chi} \end{array}\right) \tag{3.16}$$

Ohne explizit eine verallgemeinerte Spannung oder ein verallgemeinertes Hookesches Gesetz einzuführen, nehmen wir nun an, dass die freie elastische Energiedichte $f(\eta)$ eine analytische Funktion in der Verzerrung ist, sodass wir sie um $\eta = 0$ entwickeln können:

$$f(\boldsymbol{\eta}) = f_0 + M_{\alpha j} \eta_{\alpha j} + C_{\alpha j, \gamma l} \eta_{\alpha j} \eta_{\gamma l} + O(\eta_{\alpha j}^3)$$
(3.17)

Nun berücksichtigen wir die Symmetrie D_{10} eines zweidimensionalen dekagonalen Quasikristalls (Anhang A). Die phononische Verzerrung hat

3.3. DAS LOCKED-STATE-VERHALTEN

dann eine eindimensionale Mode $\varepsilon^{(1)}$, die Kompression, die sich nach der Einsdarstellung transformiert, und eine zweidimensionale Schermode $\varepsilon^{(6)}$, die sich nach der Darstellung Γ_6 transformiert. Die phasonische Verzerrung hingegen hat zwei zweidimensionale Moden $\chi^{(6)}$ und $\chi^{(8)}$, die sich nach den Darstellungen Γ_6 und Γ_8 transformieren (siehe Anhang B). Da die freie Energiedichte symmetrieinvariant ist, sich also nach der Einsdarstellung transformiert, wird aus (3.17)

$$f = f_0 + \mu_1 \varepsilon^{(1)} + \frac{1}{2} \lambda_3 (\varepsilon^{(1)})^2 + \frac{1}{2} \lambda_5 ((\varepsilon_1^{(6)})^2 + (\varepsilon_2^{(6)})^2) + \frac{1}{2} \lambda_7 ((\chi_1^{(6)})^2 + (\chi_2^{(6)})^2) + \frac{1}{2} \lambda_9 ((\chi_1^{(8)})^2 + (\chi_2^{(8)})^2) + \lambda_6 (\varepsilon_1^{(6)} \chi_1^{(6)} + \varepsilon_2^{(6)} \chi_2^{(6)}) + O(\eta_{\alpha j}^3)$$
(3.18)

Der konstante Term f_0 ist für die freie Energiedichte definitionsgemäß null². Der lineare Term tritt nur auf, wenn die Referenzkonfiguration bezüglich des äußeren Drucks nicht relaxiert ist. Die freie elastische Energiedichte ist also auch in den verallgemeinerten Verzerrungen bis zweiter Ordnung eine quadratische Form. Im zweidimensionalen dekagonalen Fall hat man fünf verallgemeinerte elastische Konstanten. Die phononischen Konstanten sind der Kompressionsmodul λ_3 und der Schermodul λ_5 . Daneben gibt es zwei Phason-elastische Konstanten λ_7 und λ_9 sowie eine Kopplungskonstate λ_6 , die die Scherung mit einer phasonischen Mode koppelt.

3.3 Das Locked-State-Verhalten

Für die freie Energiedichte dekagonaler Quasikristalle (3.18) haben wir neben der Punktsymmetrie lediglich vorausgesetzt, dass die freie Energiedichte eine analytische Funktion in den Verzerrungen ist. Wir wollen

 $^{^2}$ Betrachtet man f als potentielle Energiedichte (bei Temperatur null), so beschreibt der konstante Term die Bindungsenergiedichte des perfekten Quasikristalls.

uns nun anschauen, was die freie Energie bestimmt. Für das kanonische Ensemble ist die freie Energie:

$$F = U - TS \tag{3.19}$$

Sie hat also einen Bindungsenergieanteil und einen entropischen.

Wir nehmen an, dass die Bindungsenergie Effekte auf zwei verschiedenen Skalen hat. Zum einen gebe es einen starken Anteil, der eine lokale Ordnung erzwingt und der auch bei hohen Temperaturen die entropischen Beiträge überwiegt. Die lokale Ordnung soll also bis zur Schmelztemperatur erhalten bleiben. Weiter soll sie mit einer atomaren Dekoration von Tiles kompatibel sein, wie es etwa bei den Binärtilings der Fall ist (Abschnitt 2.9). Daneben gebe es einen schwachen Bindungsenergiebeitrag, der zur Ordnung der einzelnen Tiles führt. Dieser Anteil sei bei hohen Temperaturen gegenüber den entropischen Beiträgen zu vernachlässigen.

Dann ist man bei hohen Temperaturen im Random-Tiling-Szenario (Abschnitt 2.11), da durch unsere Annahme die Entropie praktisch ausschließlich aus der Konfigurationsentropie des Tilings besteht. Das Random-Tiling-Ensemble hat quasiperiodische Symmetrie und die Entropie geht in der Nähe des Maximums quadratisch in der globalen phasonischen Verzerrung (siehe Abschnitt 2.11). Das heißt für hohe Temperaturen gilt (3.18).

Bei tieferen Temperaturen sind auch die Beiträge der niedrigeren Energien, die eine Ordnung der Tiles bewirken, größer als die entropischen. Im Normalfall erwartet man hier als Grundzustand einen Kristall. Da die lokalen Umgebungen dieselben sind wie in der Hochtemperaturphase, gehört dieser Kristall zum Random-Tiling-Ensemble. Sind die Random-Tilings etwa Binärtilings, so könnte der Grundzustand ein Kristall aus Hexagonen oder der aus Booten sein (Abbildung 2.14) oder, stöchiometriebedingt, eine Phasenseparation in diese beiden.

Man kann sich aber auch vorstellen, dass die Energiebeiträge, die die Tieftemperaturphase bestimmen, perfekte Maching-Rules, wie in Abschnitt 2.10 beschrieben, erzwingen. Der Grundzustand wäre dann ein perfekt geordneter Quasikristall. Der natürliche Weg dies zu realisieren ist, jede Verletzung der Matching-Rules mit einer Strafenergie zu versehen. Wie wir in Abschnitt 2.10 gesehen haben, finden bei kleinen phasonischen Verzerrungen die Matching-Rules-Verletzungen nur an den Jags statt, die freie Energiedichte ist deshalb proportional zur Jag-Dichte. Die Jag-Dichte ist aber bei allen quasiperiodischen Strukturen proportional zum Betrag der phasonischen Verzerrung [32]:

$$f \propto \rho_{\text{jag}} \propto |\boldsymbol{\chi}|$$
 (3.20)

Die Annahme, die für (3.18) gemacht wurde, dass die freie Energiedichte eine analytische Funktion in der phasonischen Verzerrung ist, gilt hier also nicht! Wenn der Grundzustand quasiperiodisch ist, erwarten wir für tiefe Temperaturen ein nichtanalytisches Verhalten für die freie Energiedichte als Funktion der phasonischen Verzerrung.

Der Ausdruck $|\chi|$ in (3.20) ist insofern salopp formuliert, als keine Aussage gemacht wird, wie der Betrag der phasonischen Verzerrung definiert ist. Es ist im Allgemeinen eine betragsähnliche, also stückweise lineare, nichtanalytische Funktion, die bezüglich der Punktsymmetrie des Quasikristalls invariant ist, aber nicht zwangsläufig isotrop wie etwa die übliche Vektornorm. In meiner Diplomarbeit [18] wurde die Jag-Dichte für das Tübinger Dreiecksmuster beziehungsweise für das Mikulla-Roth-Tiling hergeleitet, sie lautet dort:

$$\rho_{\text{jag}} = \frac{1}{2} \sum_{g \in D_{10}} g|\chi_{01}| =: 10 \, \|\boldsymbol{\chi}\|_{D_{10}}$$
(3.21)

Das Gruppenmittel des Betrags der Komponente χ_{01} hat Norm-Eigenschaften, man kann sie die D_{10} -Norm der phasonischen Verzerrung nennen. Ausgeschrieben ist diese Norm eine Summe von Beträgen von fünf linearen Termen in den Komponenten von χ . Anschaulich stellt die Funktion über jedem der zweidimensionalen invarianten Unterräume der phasonischen Verzerrung je eine auf dem Kopf stehende zehnzählige Pyramide dar.

Man kann sich also insgesamt zwei Szenarien vorstellen: Entweder ist die Tieftemperaturphase ein Kristall, bei einer Übergangstemperatur wird der entropiestabilisierte Random-Tiling-Quasikristall zugunsten der kristallinen Phase instabil, oder man hat einen Übergang zwischen entropie- und energiestabilisiertem Quasikristall. Im zweiten Fall nennt man die Tieftemperaturphase mit nichtanalytischen Verhalten der freien Energie Locked-State, die Hochtemperaturphase entsprechend Unlocked-State. Dieser Locked-Unlocked-Übergang findet nur bei dreidimensionalen Quasikristallen bei endlicher Temperatur statt, für zweidimensionale Modelle ist die Übergangstemperatur zuT=0entartet [15]. Nichtsdestoweniger erwartet man bei einer rein bindungsenergetischen Betrachtung auch beim zweidimensionalen Modell ein nichtanalytisches Verhalten der freien Energie.

Kapitel 4

Phason-elastische Konstanten

Wie im vorherigen Kapitel gezeigt wurde, äußern sich die zusätzlichen Freiheitsgrade der Quasikristalle in einem phasonischen Beitrag zur freien elastischen Energie. Befindet man sich im linear-elastischen Regime, lässt sich dieser Beitrag durch zusätzliche elastische Konstanten ausdrücken. Im Fall des Locked-State-Verhaltens hat man entsprechend einen nichtanalytischen Term in der elastischen Energie. Im Folgenden werden Verfahren vorgestellt, die zur Bestimmung der Phasonelastischen Terme entwickelt wurden.

Die folgenden Ansätze gehen allesamt von Temperatur null aus, das heißt, der entropische Teil der freien Energie wird vernachlässigt.

4.1 Elastische Konstanten aus Relaxations-Simulationen

Das hier vorgestellte Verfahren wurde im Rahmen meiner Diplomarbeit [18] entwickelt und wird hier verallgemeinert. Das Prinzip besteht darin, für verschiedene fest eingestellte phononische und phasonische Verzerrungen die Grundzustandsenergie zu ermitteln. Die Energie wird durch Relaxationssimulationen mit dem an unserem Institut entwickelten Molekulardynamikprogramm IMD [33] bestimmt. Durch die Wahl von bestimmten periodischen Approximanten können die phasonischen Verzerrungen $\chi_1^{(6)}$ und $\chi_1^{(8)}$ auf verschiedene Werte im Prozentbereich eingestellt werden. Außerdem kann man durch die Verwendung von periodischen Approximanten periodische Randbedingungen verwenden um Oberflächenenergien zu vermeiden. Die phononischen Verzerrungen, nämlich die Scherung $\varepsilon_1^{(6)}$ und die Kompression $\varepsilon^{(1)}$, werden geometrisch auf die Simulationszelle aufgebracht; durch die Relaxationssimulationen können die Atome auf die Verzerrungen reagieren. So erhält man die freie elastische Energiedichte in Abhängigkeit der verschiedenen Verzerrungen. Ähnliche Simulationen wurden bereits von Zhu und Henley für dreidimensionale ikosaedrische Quasikristalle durchgeführt [40]. Weil die Simulationen aber nur für einzelne Approximanten durchgeführt werden



Abbildung 4.1: Verwendete Lennard-Jones-Potentiale.

konnten, wurde nur die Phason-Phonon-Kopplungskonstante bestimmt, während wir die Abhängigkeit der Energiedichte von allen Verzerrungen bestimmen konnten.

Als Modellquasikristall dient das Mikulla-Roth-Binärtiling (siehe Kapitel 2.9) mit Lennard-Jones-Potentialen. Die Potentialminima liegen bei idealen Nächsten-Nachbar-Abständen, die Potentialtiefe für verschiedene Atome ist doppelt so groß wie für Atome gleicher Spezies (siehe Abbildung 4.1).

Obwohl es sich hier wegen der Relaxationssimulationen um eine rein energetische Stabilisierung handelt, bei der man nach Abschnitt 3.3 in den phasonischen Verzerrungen ein nichtanalytisches Verhalten erwartet, erhalten wir eine quadratische Abhängigkeit der Energie von allen Verzerrungen, wie von der erweiterten linearen Elastizitätstheorie (3.18) vorausgesagt (Abbildung 4.2). Durch Fitten des Modells an die Daten erhält man alle verallgemeinerten elastischen Konstanten, inklusive der Phason-Phonon-Kopplungskonstante. Die bestimmten elastischen Konstanten finden sich in Tabelle 4.1.

Eine Phason-elastische Konstante ist negativ, was bedeutet, dass der Modellquasikristall mit den verwendeten Potentialen instabil ist, da



Abbildung 4.2: Schnitte durch die quadratische Form $f(\varepsilon, \chi)$ aus [19]. Aus den Krümmungen der Parabeln erhält man die elastischen Konstanten λ_3 , λ_5 , λ_7 und λ_9 . Aus der Verschiebung der Scheitel in den $f-\varepsilon_1^{(6)}$ und $f-\chi_1^{(6)}$ -Diagrammen erhält man die Kopplungskonstante λ_6 .

	Wert	Stabilität
Kompressionsmodul	$\lambda_3 = 250$	$\lambda_3 > 0$
Schermodul	$\lambda_5 = 90.2$	$\lambda_5 > 0$
1. Phason-elastische Konstante	$\lambda_7 = -2.70$	$\lambda_7 > 0$
2. Phason-elastische Konstante	$\lambda_9 = 0.8$	$\lambda_9 > 0$
Phason-Phonon-		
-Kopplungskonstante	$\lambda_6 = -1.14$	$\lambda_6^2 < \lambda_5 \lambda_7$

 Tabelle 4.1: Elastische Konstanten aus Relaxationsmessungen.

die Approximanten eine niedrigere Energie haben als der Quasikristall selbst.

In Übereinstimmung damit haben Lee et al. [23] gezeigt, dass die Grundzustände der Binärtilings mit den verwendeten Lennard-Jones-Potentialen je nach Stöchiometrie die Kristalle aus Hexagonen oder Booten sind (siehe Abbildung 2.14).

4.2 Phason-elastische Energie über den Polarenkalkül

Nach dem Ergebnis des letzten Abschnitts stellt sich die Frage, ob sich der Modellquasikristall durch Modifikation der Wechselwirkung phasonisch stabilisieren lässt. In diesem Abschnitt wird die Abhängigkeit der elastischen Energie von der phasonischen Verzerrung analysiert. Mit dem Ergebnis kann man Aussagen darüber machen, wie die Wechselwirkung zu ändern ist um Stabilität zu erreichen [20].

4.2.1 Verfahren

Wie bereits eingangs des Kapitels gesagt, beschränken wir uns auf den potentiellen Teil der freien Energie (Temperatur null). Die potentielle Energie ist eine Funktion der Atompositionen und der Wechselwirkung. Wenn man eine endliche Potentialreichweite voraussetzt, kann man die potentielle Energie als Summe über Energien von lokalen Umgebungen mit Radius der Potentialreichweite schreiben. Wir wählen die Umgebungen so, dass es immer ein Zentralatom gibt. Lokale Umgebungen mit endlichem Radius gibt es auch bei einem Quasikristall nur endlich viele. Die relative Häufigkeit einer lokalen Umgebung in einem gegebenen Approximant ist eine Funktion der phasonischen Verzerrung und lässt sich mit dem Polarenkalkül berechnen (Abschnitt 2.7). Die Energie, die wir der Umgebung zuweisen, ist der Energiebeitrag des Zentralatoms. Dadurch wird eine Mehrfachzählung vermieden, obwohl sich die Umgebungen überlappen. Wie dieser Energiebeitrag bestimmt wird, hängt von der Wechselwirkung ab. Bei Paarpotentialen nimmt man die Hälfte der Wechselwirkung des Zentralatoms mit jedem anderen Atom in der Umgebung. Komplexere Wechselwirkungen würde man in Mehrkörperterme entwickeln.¹ Die einzelnen Terme teilt man dann auf die teilnehmenden Atome auf, von einem Dreikörperterm entfällt also ein Drittel auf das Zentralatom der aktuellen Umgebung. Das Verfahren liefert schließlich die Phason-elastische Energie als Funktion der phasonischen Verzerrung, parametrisiert durch die Wechselwirkung.

4.2.2 Details zur Berechnung

Denkt man zunächst an einen periodischen Approximanten, so lässt sich die potentielle Energiedichte f schreiben als die potentielle Energie in einer Einheitszelle, geteilt durch das Volumen der Einheitszelle. Die potentielle Energie kann man schreiben als Summe der potentiellen Energien pro Atom, das Volumen der Einheitszelle als Summe der Voronoivolumina der Atome:

$$f = \frac{E_{\text{pot}}}{V} = \frac{\sum_{i \in \text{Atome}} E_i}{\sum_{i \in \text{Atome}} V_i}$$
(4.1)

Ist nun die Wechselwirkung durch einen Abschneideradius $R_{\rm c}$ beschränkt, kann man Atome mit gleichen Umgebungen zusammenfassen

¹Durch die beschränkte Reichweite der Wechselwirkung bricht diese Entwicklung natürlich ab, weil das Zentralatom maximal mit allen Atomen in der Umgebung wechselwirken kann.

und mit ihrer Anzahl in der Einheitszelle N_i gewichten:

$$f = \frac{\sum_{i \in \text{Umgebungen}} N_i E_i}{\sum_{i \in \text{Umgebungen}} N_i V_i}$$
(4.2)

 E_i bezeichnet jetzt die potentielle Energie des Zentralatoms der Umgebung, V_i das Voronoivolumen des Zentralatoms. Von der Anzahl pro Einheitszelle kann man zu relativen Häufigkeiten n_i übergehen. In dieser Form ist man auch nicht mehr auf periodische Approximanten beschränkt:

$$f = \frac{\sum_{i} n_i E_i}{\sum_{i} n_i V_i} \tag{4.3}$$

Nach dem Polarenkalkül ist aber die relative Häufigkeit einer Umgebung proportional ihrer Akzeptanzfläche A_i :

$$f = \frac{\sum_{i} A_i E_i}{\sum_{i} A_i V_i} = \frac{1}{V^*} \sum_{i} A_i E_i$$

$$(4.4)$$

$$V^* := \sum_i A_i V_i \tag{4.5}$$

Die Akzeptanzfläche einer Umgebung ist eine Funktion der phasonischen Verzerrung, die Energie des Zentralatoms hängt von der atomaren Konfiguration in der Umgebung und von der Wechselwirkung ab, das Voronoivolumen von den nächsten Nachbarn des Zentralatoms. Damit hat man die freie Energiedichte als Funktion der phasonischen Verzerrung, parametrisiert durch die Wechselwirkung.

In den nächsten Abschnitten wird auf Details der Konstruktion der Umgebungen, der Berechnung der Akzeptanzbereiche, der Energie und der Voronoivolumina eingegangen.

4.2.2.1 Konstruktion der Umgebungen

Für einen gegebenen Radius werden alle möglichen Umgebungen durch einen klassischen Backtracking-Algorithmus bestimmt. Man beginnt mit der Mitte der Umgebung als einzigem Vertex. Dann versucht man systematisch an Vertizes, die noch nicht vollständig mit Rauten umgeben sind



Abbildung 4.3: Schmale Raute und dazugehöriger Akzeptanzbereich.

und innerhalb der Umgebung liegen, jede der zwei Binärtiling-Rauten in jeder möglichen Orientierung anzulegen, wobei die Anlegeregeln der Binärtilings berücksichtigt werden (siehe Abschnitt 2.9). Eine Lösung ist gefunden, wenn die Umgebung vollständig von der erzeugten Parkettierung überdeckt wird. Ein Fehler tritt auf, wenn sich zwei Rauten überlappen oder wenn gegen die Dekorationsregel der Binärtilings verstoßen wurde. Nach dem Prinzip des Backtracking-Algorithmus wird im Erfolgsfall wie bei einem Fehler die zuletzt gelegte Raute durch die nächste Alternative ersetzt. Sind alle Möglichkeiten durchgegangen, wird die Raute entfernt und eine Ebene höher die nächste Alternative getestet. Dadurch erreicht man alle Lösungen.

Am Ende eliminiert man symmetrieäquivalente Umgebungen durch paarweises Vergleichen, sodass man schließlich einen vollständigen Satz von paarweise symmetrieinäquivalenten Lösungen erhält.

4.2.2.2 Berechnung der Akzeptanzbereiche

Nach dem Polarenkalkül, wie wir es in Kapitel 2.7 formuliert haben, ist der Akzeptanzbereich einer bestimmten atomaren Konfiguration der Schnitt der Orthogonalraum-Projektionen der atomaren Hyperflächen aller beteiligter Atome. So ist zum Beispiel der Akzeptanzbereich einer schmalen Raute in der gezeigten Orientierung (Abbildung 4.3, links) der Schnitt von zwei Zehnecken (atomare Hyperflächen der großen Atome) und zwei Fünfsternen (atomare Hyperflächen der kleinen Atome), also die "Fliege" in Abbildung 4.3, rechts. Die Ecken der atomaren Hyperflächen sind Hypergitterpunkte. In dem gezeigten Beispiel sind auch alle Ecken des Schnitts Hypergitterpunkte, da sie alle mit Ecken der einzel-



Abbildung 4.4: Zwei schmale Rauten und der dazugehörige Akzeptanzbereich.



Abbildung 4.5: Akzeptanzbereich von Abbildung 4.3 ohne (links), mit kleiner (Mitte) und mit grosser (rechts) phasonischer Verzerrung. Die Transformation ist nicht affin. Bei grosser phasonischer Verzerrung ändert sich der Typ der Ecken. Aus der "Fliege" werden zwei Dreiecke.

nen Hyperflächen zusammenfallen. Bei anderen Umgebungen wie den zwei schmalen Rauten aus Abbildung 4.4 kommt eine weitere mögliche Ecke hinzu. Der Akzeptanzbereich, der zentrale "Drachen", hat als Ecken drei Hypergitterpunkte und einen Schnitt von zwei Hyperflächenkanten (untere Ecke).

Die phasonische Verzerrung wirkt auf den Orthogonalraum nicht affin (Abbildung 4.5). Bei großer phasonischer Verzerrung ändern sich deshalb Anzahl und Typ der Ecken, teilweise auch die Topologie des Akzeptanzbereiches (Abbildung 4.5). Da wir unser Ergebnis nach der phasonischen Verzerrung entwickeln wollen, sind wir nur an kleinen phasonischen Verzerrungen interessiert und können deshalb fordern, dass die phasonischen Verzerrungen so klein sind, dass sich die Ecken zwar



Abbildung 4.6: Konfiguration, die im Quasikristall nicht erlaubt ist, aber bei kleinster phasonischer Verzerrung auftritt. Der Akzeptanzbereich ist zu einem Punkt entartet.

unterschiedlich verschieben, die Form des Akzeptanzbereiches aber ansonsten gleich bleibt. Mit dieser Bedingung haben auch die Akzeptanzbereiche aller symmetrieäquivalenten Umgebungen die gleiche Anzahl Ecken. Wir bestimmen deshalb den Akzeptanzbereich zunächst nur für eine repräsentative Umgebung und transformieren ihn dann mit allen Symmetrieoperationen, die nichtäquivalente Umgebungen erzeugen.

Eine Ausnahme bilden entartete Akzeptanzbereiche. Die in Abbildung 4.6 gezeigte Konfiguration hat im Quasikristall ohne phasonische Verzerrung als Akzeptanzbereich nur einen Punkt, kommt also nicht vor. Bei der kleinsten phasonischen Verzerrung öffnet sich der Akzeptanzbereich für manche Orientierungen der Umgebung zu einem Dreieck, für andere ist der Schnitt leer. Das heißt, die gezeigte Konfiguration kommt in jedem Approximanten vor, aber nie in jeder Orientierung. Eine genauere Betrachtung zeigt, dass es zu jeder solchen Umgebung eine spiegelsymmetrische gibt, die nie gleichzeitig in einem Approximanten vorkommen. Kommt die eine Umgebung bei einer phasonischen Verzerrung χ mit relativer Häufigkeit n vor, so kommt bei der phasonischen Verzerrung $-\chi$ die spiegelsymmetrische Umgebung mit der gleichen relativen Häufigkeit n vor. Für kleine Abstände ist dies die einzige Art von entarteten Akzeptanzbereichen. Man kann sich damit behelfen, dass man nur den halben Orbit der symmetrieäquivalenten Umgebungen berücksichtigt, da von zwei Umgebungen, die durch eine bestimmte Spiegelung ineinander übergehen, immer genau eine auftaucht, und der Akzeptanzbereich hier quadratisch in den Komponenten von χ geht, das Vorzeichen für die Häufigkeit also keine Rolle spielt. Eine ausführliche Behandlung der Fallunterscheidungen bei entarteten Akzeptanzbereichen, die bei größeren Abständen nötig wird, folgt in Abschnitt 4.3.1.2.

Berechnung der Koordinaten im Orthogonalraum Wir berücksichtigen die phasonische Verzerrung im Hyperraum, indem wir die Basisvektoren e_i verzerren. Das hat den Vorteil, dass wir auch bei phasonischer Verzerrung die Ecken der atomaren Hyperflächen als Gittervektoren ausdrücken können. Da wir aber sowohl Parallel- als auch Orthogonalraum in kartesischen Koordinaten ausdrücken, kommt die phasonische Verzerrung bei der Projektion in den Orthogonalraum explizit ins Spiel:

$$\boldsymbol{\pi}^{\perp} \boldsymbol{e}_i = \boldsymbol{e}_i^{\perp} + \boldsymbol{\chi} \boldsymbol{e}_i^{\parallel} \tag{4.6}$$

Ist eine Ecke des Akzeptanzbereiches eine Projektion eines Hypergitterpunktes, so haben wir durch die Projektion (4.6) bereits seine Orthogonalraumkoordinaten als lineare Funktion in χ . Ist eine Ecke dagegen ein Schnitt von Projektionen zweier Kanten P_1P_2 und P_3P_4 , so müssen zunächst die Endpunkte in den Orthogonalraum projiziert werden, wo jeder Endpunkt eine lineare Funktion in χ ist. Die eigentliche Ecke Xerhält man dann durch Schnitt der zwei Geraden im Orthogonalraum. Damit sind die Koordinaten von X im Allgemeinen eine gebrochen rationale Funktion in χ und damit auch die Fläche des Akzeptanzbereiches.

Berechnung der Fläche Sind die Koordinaten der Ecken des Akzeptanzbereiches bekannt, lässt sich dessen Fläche durch eine einfache Triangulierung berechnen. Man nummeriert die Ecken gegen den Uhrzeigersinn (von 0 bis n - 1). Dann gilt:

$$A = \sum_{i=2}^{n-1} \triangle (\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_{i-1}, \mathbf{r}_i) = \sum_{i=2}^{n-1} \frac{1}{2} (\mathbf{r}_{i-1} - \mathbf{r}_0) \times (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_0) \qquad (4.7)$$
$$(\mathbf{a} \times \mathbf{b} := a_1 b_2 - a_2 b_1)$$



Abbildung 4.7: Berechnung der Akzeptanzflächen durch Triangulierung

Dies ist für konvexe Flächen unmittelbar einsichtig (Abbildung 4.7, links), gilt aber auch für nichtkonvexe Flächen, wenn man die Flächeninhalte der einzelnen Dreiecke mit Vorzeichen behaftet, was man durch die Berechnung mittels Vektorprodukt tut (Abbildung 4.7, rechts).

4.2.2.3 Berechnung der Energie

Die Berechnung der Energie einer Umgebung ist von der Wechselwirkung abhängig. Wenn U_i die Menge der Indizes aller Atome ist, die in der Umgebung liegen, so gilt für Paarpotentiale $\varphi_{ij}(r)$:

$$E_{i} = \sum_{\substack{j \in U_{i} \\ j \neq i}} \frac{1}{2} \varphi_{ij} \left(r_{ij} \right), \qquad (4.8)$$

wobei r_{ij} der Abstand der Atome *i* und *j* ist. Für komplexere Wechselwirkungen ist die Energieberechnung entsprechend anzupassen, wobei darauf zu achten ist, dass keine Terme mehrfach gezählt werden.

4.2.2.4 Berechnung der Voronoivolumina

Wenn man weiß, mit welchen Rauten ein Vertex umgeben ist, lässt sich dessen Voronoivolumen durch entsprechende Aufteilung der Rauten (Abbildung 4.8, links) leicht berechnen. Wenn die Kantenlänge der Rauten die Einheit ist, hat die fette Raute das Volumen s, die schmale Raute das Volumen s/τ . Die Volumina V_1 bis V_4 in Abbildung 4.8 betragen $V_1 = \frac{s}{2\tau^2}, V_2 = \frac{s}{2\tau}, V_3 = \frac{1}{8s\tau}$ und $V_4 = \frac{\tau}{8s}$. Betrachtet man die möglichen Nächste-Nachbar-Konfigurationen (Abbildung 4.9), so ergeben sich für große Atome mögliche Voronoivolumina $10V_3, 7V_3 + V_2$,



Abbildung 4.8: Aufteilung der Rauten zur Bestimmung der Voronoivolumina (links). Rechts werden modifizierte Volumina pro Atom erzeugt, sodass jedes Atom gleicher Sorte gleiches Volumen hat.



Abbildung 4.9: Nächste-Nachbar-Konfigurationen für ein großes (oben) beziehungsweise für ein kleines Atom (unten) mit Voronoivolumina.

 $4V_3 + 2V_2$ und $V_3 + 3V_2$. Kleine Atome können Voronoivolumina $5V_1$, $3V_1 + V_4$ oder $V_1 + 2V_4$ haben. Da wir die Voronoivolumina nur benötigen, um das normierende Volumen zu berechnen, reicht es aus, Volumina pro Atom zu haben, die den Raum lückenlos und überlappungsfrei bedecken. Man kann deshalb die Aufteilung so modifizieren, dass jedes große Atom das gleiche zugeordnete Volumen hat, ebenso jedes kleine (Abbildung 4.8, rechts). Diese Forderung führt zu folgenden Bedingungen für die modifizerten Volumina V'_1 bis V'_4 :

$$3V'_{3} = V'_{2}$$
, $2V'_{1} = V'_{4}$, $2V'_{1} + 2V'_{2} = s$, $2V'_{3} + 2V'_{4} = \frac{s}{\tau}$ (4.9)

Die Lösung für dieses lineare Gleichungssystem ist $V'_1 = \frac{2s^3}{5\tau^3}, V'_2 = \frac{6s^3}{5\tau^2}, V'_3 = \frac{2s^3}{5\tau^2}, V'_4 = \frac{4s^3}{5\tau^3}$. Damit sind die zugeordneten Volumina für große

und kleine Atome:

$$V'_{\rm A} = \frac{4s^3}{\tau^2} , \quad V'_{\rm B} = \frac{2s^3}{\tau^3}$$
 (4.10)

Da nun jedes Atom einer Sorte das gleiche zugeordnete Volumen hat, vereinfacht sich das Normierungsvolumen (4.5) zu:

$$V^* = \sum_i A_i V_i = A_{\rm A} V_{\rm A}' + 2A_{\rm B} V_{\rm B}'$$
(4.11)

Der Faktor zwei im zweiten Summand kommt daher, dass die kleinen Atome auf zwei Äquivalenzklassen von Vertizes sitzen, die jeweils einen Fünfstern als Akzeptanzbereich haben.

Die zwei Akzeptanzbereiche lassen sich wie im Abschnitt 4.2.2.2 beschrieben in Abhängigkeit von der phasonischen Verzerrung berechnen:

$$A_{\rm A} = \frac{5s}{\tau^2} \left(\tau^3 + \det \boldsymbol{\chi} \right) \tag{4.12}$$

$$A_{\rm B} = \frac{5s}{\tau} \left(\tau - \det \boldsymbol{\chi} \right) \tag{4.13}$$

Damit lässt sich das normierende Volumen (4.11) berechnen, wobei sich herausstellt, dass sich die Abhängigkeit von der phasonischen Verzerrung heraushebt:

$$V^* = A_{\rm A} V'_{\rm A} + 2A_{\rm B} V'_{\rm B} = \frac{25s^2}{\tau}$$
(4.14)

4.2.3 Berechnung für Abschneideradius 1.92

Für die konkrete Berechnung der freien Energiedichte verwenden wir den Abschneideradius $R_c = 1.92$. Er ist gerade so gewählt, dass wir die charakteristischen zehnzähligen Cluster (Abbildung 4.10, Umgebung 1) noch voll berücksichtigen. Für diesen Abschneideradius gibt es bereits 299 paarweise symmetrieinäquivalente lokale Umgebungen. Allerdings tauchen nur 19 davon im perfekten Quasikristall auf, weitere 4 erscheinen bei beliebig kleiner phasonischer Verzerrung (Abbildung 4.10). Bei den übrigen 276 ist der Schnitt der atomaren Hyperflächen bei kleinen



Abbildung 4.10: Lokale Umgebungen, die bei kleinen phasonischen Verzerrungen vorkommen. Die letzten vier Umgebungen kommen im Quasikristall nicht vor, aber in Approximanten.



Abbildung 4.11: Akzeptanzbereiche der lokalen Umgebungen aus Abbildung 4.10.

r_1	1/ au	0.62	⊷
r_2	1	1.00	
r_3	$2s/\tau$	1.18	₽
r_4	$\sqrt{4-\tau}$	1.54	•
r_5	au	1.62	$ \stackrel{\bullet}{\Rightarrow} $
r_6	2s	1.90	

Tabelle 4.2: Abstände, die im Binärtiling bis zum Abschneideradius $R_c = 1.92$ auftreten.

phasonischen Verzerrungen leer, sodass wir sie vernachlässigen (vergleiche Abschnitt 4.2.2.2). Abbildung 4.11 zeigt, wie der Akzeptanzbereich des großen beziehungsweise kleinen Zentralatoms in die Akzeptanzbereiche der einzelnen Umgebungen zerfällt.

Berechnet man die Akzeptanzbereiche der 23 Umgebungen wie oben beschrieben und entwickelt die freie Energiedichte (4.4) in χ bis zweiter Ordnung, so erhält man:

$$f = f_{0} + \frac{1}{2}\lambda_{7}\chi^{(6)^{2}} + \frac{1}{2}\lambda_{9}\chi^{(8)^{2}} + O(\chi^{3})$$

$$\lambda_{7} = -0.47\varphi_{AA}(r_{3}) - 2.38\varphi_{AA}(r_{6})$$

$$+ 0.76\varphi_{BB}(r_{1}) - 0.68\varphi_{BB}(r_{3}) - 3.47\varphi_{BB}(r_{5}) - 0.91\varphi_{BB}(r_{6})$$

$$+ 0.58\varphi_{AB}(r_{2}) + 4.40\varphi_{AB}(r_{4})$$

$$\lambda_{9} = 0.47\varphi_{AA}(r_{3}) - 1.02\varphi_{AA}(r_{6})$$

$$- 0.76\varphi_{BB}(r_{1}) - 2.72\varphi_{BB}(r_{3}) - 4.22\varphi_{BB}(r_{5}) - 4.27\varphi_{BB}(r_{6})$$

$$- 0.58\varphi_{AB}(r_{2}) + 2.40\varphi_{AB}(r_{4})$$

$$(4.17)$$

Die Abstände r_i sind in Tabelle 4.2 gezeigt.

Mit den Lennard-Jones-Potentialen aus Kapitel 4.1 ergibt sich $\lambda_7 = -2.40$ und $\lambda_9 = 1.03$, die Simulationen aus Kapitel 4.1 lieferten $\lambda_7 = -2.70$ und $\lambda_9 = 0.80$. Der Unterschied zwischen der Berechnung und den Simulationen ergibt sich einerseits durch den Unterschied im Abschneideradius (1.92 bei der Berechnung, 7 bei den Simulationen), vor allem aber dadurch, dass die Atome in den Simulationen lokal relaxieren können, während sie bei der Berechnung auf den idealen Modellpositionen sitzen.

Anhand von (4.16) und (4.17) kann man voraussagen, welche Änderungen der Potentiale zur phasonischen Stabilisierung beitragen können. Die Nächste-Nachbar-Abstände liefern für λ_7 und λ_9 gleiche Beiträge mit entgegengesetztem Vorzeichen (erste Spalte in (4.16) beziehungsweise (4.17)). Das entspricht der Tatsache, dass Binärtilings mit gleicher Stöchiometrie energetisch entartet sind, wenn man nur Nächste-Nachbar-Wechselwirkungen betrachtet [22]. Für physikalisch sinnvolle Potentiale ist dieser Beitrag für λ_7 negativ, für λ_9 positiv. Da die phasonische Verzerrung $\chi^{(6)}$ die relative Häufigkeit der kleinen Atome erhöht, während die Mode $\chi^{(8)}$ diese erniedrigt, stellt dieser Beitrag die Abhängigkeit der Energiedichte von der Bindungsdichte dar.

Die Beiträge von größeren Abständen haben fast alle negative Koeffizienten, was zu einem positiven Beitrag führt, da die Lennard-Jones-Potentiale negativ sind (abgesehen vom repulsiven Teil bei sehr kurzen Abständen). Der einzige negative Beitrag (für beide elastische Konstanten) kommt von $\varphi_{AB}(r_4)$. Man erwartet also Phason-elastische Stabilisierung, wenn das AB-Potential dort positiv ist. Wir führen für φ_{AB} eine Überlagerung von Lennard-Jones- und Dzugutov-Potential [4] ein, wie sie in [29] verwendet werden. Bei diesem Potential bleibt das Minimum praktisch unverändert gegenüber dem Lennard-Jones-Potential, es gibt aber ein Maximum bei r_4 , dessen Höhe sich einstellen lässt (siehe Abbildung 4.12).

Stellen wir das Maximum von φ_{AB} auf 0.25 ein, ergibt sich nach (4.16),(4.17) für die elastischen Konstanten $\lambda_7 = -0.31$, $\lambda_9 = 2.17$. Molekulardynamische Relaxationssimulationen ergeben für die gleichen Potentiale $\lambda_7 = -0.88$, $\lambda_9 = 1.34$.



Abbildung 4.12: Lennard-Jones-Potentiale und gemischtes Lennard-Jones-Dzugutov-Potential φ'_{AB} .

Erhöhen wir das Maximum auf 0.5, ergibt die Rechnung positive Werte für beide elastische Konstanten, allerdings schlägt die Relaxationssimulation um zu sehr stark negativen Werten für beide elastischen Konstanten, und die Abhängigkeit der elastischen Energie von der phasonischen Verzerrung weicht auch für kleine phasonische Verzerrungen stark von der quadratischen Näherung ab.

Man sieht deutlich, dass ein Vergleich der elastischen Konstanten nach (4.16) und (4.17) einerseits und aus Relaxationssimulationen andererseits essentiell ist, da unser Modell keine lokalen Relaxationen erlaubt, die Atome sitzen exakt auf den Quasigitterpunkten. Bei Lennard-Jones-Potentialen, die hinter dem Minimum keine repulsiven Anteile haben, ist der Fehler durch diese Vereinfachung am kleinsten (< 30%), bei dem modifizierten Potential mit Maximum 0.25 liegt der Fehler schon bei über 60%. Erhöht man das Maximum weiter, überwiegt der Energiegewinn durch lokale Relaxation schließlich völlig die Phason-elastische Energie, und die Rechnung verliert ihre Gültigkeit.

Durch die analytischen Ausdrücke für die Phason-elastischen Konstanten können wir die Potentiale gezielt so verändern, dass wir uns in Richtung Phason-elastischer Stabilität bewegen. Wenn auch die elastische Konstante λ_7 noch leicht negativ ist, ist ihr Betrag doch deutlich kleiner geworden. Dass der Grundzustand für die modifizierten Potentiale sehr viel näher am Quasikristall liegt als für die Lennard-Jones-Potentiale, zeigen auch Monte-Carlo-Simulationen (siehe Kapitel 5).

Um die Phason-elastische Stabilisierung weiter voranzutreiben, muss man zu größeren Abständen gehen. Die hier vorgestellte Berechnung über lokale Umgebungen wird aber mit dem Abschneideradius schnell sehr aufwendig. Deshalb wird im nächsten Abschnitt zunächst das Verfahren vereinfacht.

4.3 Beschränkung auf Paarpotentiale

Wie wir im letzten Abschnitt gesehen haben, ist das vorgestellte Verfahren zwar prinzipiell sehr mächtig, die Anzahl der lokalen Umgebungen explodiert aber mit dem Abschneideradius und ist sehr bald nicht mehr beherrschbar. Auch können die Fallunterscheidungen bei entarteten Akzeptanzbereichen sehr komplex werden. In Abschnitt 4.2.2.2 wurde nur ein spezieller Typ dieser Fallunterscheidungen vorgestellt, der schon bei sehr kleinen Abschneideradien auftaucht.

Da wir uns in dieser Arbeit letztendlich sowieso auf Paarpotentiale beschränken, kann man dies bereits bei der Berechnung der Akzeptanzbereiche tun, wodurch sich diese enorm vereinfacht. Dadurch kann man die freie Energiedichte für deutlich größere Abschneideradien berechnen.

4.3.1 Details zur Berechnung

Wenn wir uns von Anfang an auf Paarpotentiale beschränken, lässt sich (4.1) schreiben als:

$$f = \frac{\sum_{i,j\neq i} \frac{1}{2} \varphi_{ij} \left(r_{ij} \right)}{\sum_{i} V_{i}} \tag{4.18}$$

Wenn man die Potentialreichweite wieder auf einen Abschneideradius R_c beschränkt, bilden die Abstandsvektoren $\boldsymbol{r} = \boldsymbol{r}_j - \boldsymbol{r}_i$ im Hyperraum, die einen Beitrag zur potentiellen Energie liefern, eine endliche Menge

4.3. BESCHRÄNKUNG AUF PAARPOTENTIALE

 $D(R_{\rm c})$. Damit wird aus (4.18)

$$f = \frac{\sum_{i, \boldsymbol{r}} \frac{1}{2} \varphi_{ab} \left(\pi^{\parallel} \boldsymbol{r} \right)}{\sum_{i} V_{i}} \tag{4.19}$$

Dabei stehen *a* und *b* für die Atomtypen $(a, b \in T = \{A, B_1, B_4\}^2)$. $a = a(\mathbf{r}_i)$ und $b = b(\mathbf{r}_i + \mathbf{r})$ sind Funktionen der Hypergittervektoren. Nun kann man analog zu Abschnitt 4.2.2 zu relativen Häufigkeiten von Atomen eines Typs mit Wechselwirkung im Abstand $\pi^{\parallel}\mathbf{r}$ übergehen, diese durch Akzeptanzbereiche ausdrücken, und erhält schließlich:

$$f = \frac{1}{2V^*} \sum_{\boldsymbol{r} \in D, a \in T} A_{a,b,\pi^{\perp}\boldsymbol{r}}(\boldsymbol{\chi}) \varphi_{ab}(\pi^{\parallel}\boldsymbol{r})$$
(4.20)

Der Atomtyp $b = b(a, \mathbf{r})$ ist nun eine Funktion des Atomtyps a und des Abstandsvektors \mathbf{r} .

Das normierende Volumen V^* ist das gleiche wie in Abschnitt 4.2.2.4. Statt der möglichen Umgebungen müssen alle auftretenden Abstände zu einem gegebenen Abschneideradius bestimmt werden. Die Akzeptanzbereiche müssen nun für die Abstände berechnet werden, weshalb diese nur noch Schnitte von den Projektionen zweier atomarer Hyperflächen sind.

4.3.1.1 Bestimmung der Abstände

Die Abstände, die zur Energie beitragen, sind im Parallelraum durch den Abschneideradius R_c begrenzt. Sie sind es aber auch im Orthogonalraum, da sich die Projektionen der atomaren Hyperflächen zweier wechselwirkender Atome schneiden müssen (sonst gehören nicht beide Atome zur Konfiguration). Wenn R_A der Radius der Umkreise der atomaren Hyperflächen im Orthogonalraum ist³, so ist der maximale Abstand zweier Hypergitterpunkte im Orthogonalraum $2R_A$. Damit sind

 $^{^2}$ Der Index beim Atomtyp *B* (kleines Atom) bezeichnet das Untergitter, auf dem das Atom sitzt. Für die Wechselwirkung spielt das zwar keine Rolle, wird im Folgenden aber wichtig, da die zwei Untergitter verschiedene atomare Hyperflächen haben.

 $^{^3}$ Das Zehneck (atomare Hyperfläche der großen Atome) und die Fünfsterne (atomare Hyperflächen der kleinen Atome) haben den gleichen Umkreis.

die Abstandsvektoren in alle Richtungen des Hyperraums beschränkt. Die Menge D der möglichen Abstandsvektoren ist:

$$D := A_4^* \cap \left\{ \boldsymbol{x} \in \mathbb{R}^4 \mid x_0^2 + x_1^2 \le R_c^2 \; ; \; x_2^2 + x_3^2 \le (2R_A)^2 \right\}$$
(4.21)

Damit erhält man zu viele Abstandvektoren, da die atomaren Hyperflächen keine Kreisscheiben sind. Zusätzliche Abstände haben aber einen leeren Schnitt der Hyperflächenprojektionen und fallen deshalb bei der Berechnung wieder heraus.

Berechnung von $R_{\mathbf{A}}$ Sowohl die Ecken des Zehnecks als auch die äußeren Ecken der Fünfsterne haben zum Mittelpunkt den Abstand $\pm (\mathbf{e}_i + \mathbf{e}_{i+2})$. Bei der Projektion in den Orthogonalraum werden diese Abstände abhängig von der phasonischen Verzerrung, also auch der Umkreisradius $R_{\mathbf{A}}$:

$$R_{\mathrm{A}} = \max_{i} \left\| \pm \boldsymbol{\pi}^{\perp} (\boldsymbol{e}_{i} + \boldsymbol{e}_{i+2}) \right\| = \max_{i} \left\| \boldsymbol{e}_{i}^{\perp} + \boldsymbol{\chi} \boldsymbol{e}_{i}^{\parallel} + \boldsymbol{e}_{i+2}^{\perp} + \boldsymbol{\chi} \boldsymbol{e}_{i+2}^{\parallel} \right\|$$

$$\leq \left\| \boldsymbol{e}_{i}^{\perp} + \boldsymbol{e}_{i+2}^{\perp} \right\| + \max_{i} \left\| \boldsymbol{\chi} \left(\boldsymbol{e}_{i}^{\parallel} + \boldsymbol{e}_{i+2}^{\parallel} \right) \right\|$$

$$\leq \tau + \left\| \boldsymbol{\chi} \right\|_{\mathrm{F}} \frac{1}{\tau} \leq \tau + \chi_{\max} \frac{1}{\tau} =: \hat{R}_{\mathrm{A}}$$

$$(4.22)$$

Indem wir uns also von vorneherein auf ein Maximum χ_{max} der phasonischen Verzerrung festlegen (bezüglich deren Frobenius-Norm), können wir den Umkreisradius der atomaren Hyperflächen auf \hat{R}_{A} abschätzen. Diese Abschätzung wird bei der Berechnung der möglichen Abstände in (4.21) verwendet. Wieder gilt, dass zu viel ausgewählte Abstandsvektoren bei der Berechnung wieder herausfallen, weil sie einen leeren Schnitt als Akzeptanzbereich haben. Die Wahl des Maximums für die phasonische Verzerrung ist nicht kritisch, man kann bequem $\chi_{\text{max}} = 0.1$ verwenden, ohne dass zu viele Abstandsvektoren hinzukommen. Die spätere Entwicklung bis zweiter Ordnung beschränkt die Ergebnisse sowieso auf phasonische Verzerrungen im Prozentbereich.

4.3.1.2 Berechnung der Akzeptanzbereiche

Die Berechnung des Akzeptanzbereiches eines Abstandes ist identisch mit der in Abschnitt 4.2.2.2 beschriebenen Methode für lokale Umgebungen, allerdings muss man nur die Projektionen von zwei atomaren

60

Hyperflächen schneiden. Bei größeren Abständen, die man nun erreicht, treten aber neue Typen von entarteten Ecken und Kanten auf, die hier diskutiert werden sollen.

Normalerweise wird der Akzeptanzbereich A_e nur für eine Orientierung r eines Abstandes berechnet. Dann wird eine minimale Untermenge H von D_{10} bestimmt, die den Orbit von r bezüglich D_{10} erzeugt. Die Akzeptanzbereiche der anderen Orientierungen werden dann durch Transformation berechnet:

$$g \in H : A_g = gA_e\left(\boldsymbol{\chi}\right) = A_e\left(\boldsymbol{D}\left(g^{-1}\right)\boldsymbol{\chi}\right) \tag{4.23}$$

Der Akzeptanzbereich für alle Orientierungen eines Abstandes ist dann die Summe

$$A = \sum_{g \in H} gA_e \tag{4.24}$$

Das gilt aber nur, wenn die Akzeptanzbereiche der einzelnen Orientierungen durch Transformation ihrer Ecken ineinander überführen lassen, was für kleine phasonische Verzerrungen erfüllt ist, solange es keine entarteten Ecken gibt.

Abbildung 4.13 zeigt den Akzeptanzbereich A_e eines Abstandes \mathbf{r} , der beim perfekten Quasikristall ($\boldsymbol{\chi} = 0$) null ist. Eine Ecke der einen atomaren Hyperfläche liegt genau auf einer Kante der anderen, bei kleinster phasonischer Verzerrung kann ein Akzeptanzbereich mit endlichem Flächeninhalt entstehen oder ein leerer Schnitt. Welche Mode der phasonischen Verzerrung die Entartung aufhebt, hängt von der Orientierung der Kante ab. Bei der senkrechten Kante wie in der Abbildung ist es die Komponente χ_{01} , für $\chi_{01} = 0$, χ_{00} , χ_{10} , χ_{11} beliebig, bleibt die Entartung erhalten. Nun gibt es für jede Orientierung der Kante, die für die Entartung zuständig ist, eine Spiegelung $c_5^i c_2$, sodass sich der Akzeptanzbereich $A_{c_5^i c_2}$ des Abstandes $c_5^i c_2 \mathbf{r}$ bezüglich der Entartung genau entgegengesetzt verhält. Hat \mathbf{r} als Akzeptanzbereich einen leeren Schnitt (keinen Akzeptanzbereich), so hat $c_5^i c_2 \mathbf{r}$ einen Akzeptanzbereich mit endlichem Flächeninhalt und umgekehrt (Abbildung 4.13 oben, un-



Abbildung 4.13: Verhalten eines entarteten Akzeptanzbereiches des Abstandes r (oben) und des Abstandes c_2r (unten).

ten). Für die Akzeptanzbereiche in Abbildung 4.13 gilt also:

$$A_{e} = \begin{cases} \tilde{A}_{e}(\boldsymbol{\chi}) & ; \, \chi_{01} \ge 0 \\ 0 & ; \, \chi_{01} < 0 \end{cases}, \, A_{c_{2}} = \begin{cases} 0 & ; \, \chi_{01} \ge 0 \\ \tilde{A}_{c_{2}}(\boldsymbol{\chi}) & ; \, \chi_{01} < 0 \end{cases}$$
(4.25)

wobei \tilde{A}_g analytische Funktionen in χ sind. Für die Summe dieser zwei Akzeptanzbereiche kann man schreiben:

$$A_{e} + A_{c_{2}} = \begin{cases} A_{e} & ; \chi_{01} \ge 0\\ A_{c_{2}} & ; \chi_{01} < 0 \end{cases}$$
$$= \frac{1}{2} \left(A_{e} + A_{c_{2}} \right) + \frac{1}{2} \frac{\left(A_{e} - A_{c_{2}} \right)}{\chi_{01}} \left| \chi_{01} \right|$$
$$= \frac{1}{2} \left(\tilde{A}_{e} + \tilde{A}_{c_{2}} \right) + \frac{1}{2} \frac{\left(\tilde{A}_{e} - \tilde{A}_{c_{2}} \right)}{\chi_{01}} \left| \chi_{01} \right|$$
(4.26)

62


Abbildung 4.14: Akzeptanzbereich, bei dem ebenfalls eine Ecke genau auf einer Kante zu liegen kommt. Für $\chi_{01} > 0$ ist der Akzeptanzbereich ein Achteck, für $\chi_{01} < 0$ ein Viereck. Wieder gibt es einen Akzeptanzbereich eines symmetrieäquivalenten Abstandes, der sich genau umgekehrt verhält.

Da sich die A_e für $\chi_{01} < 0$ herausheben, lässt sich A_e auch für $\chi_{01} < 0$ durch \tilde{A}_e fortsetzen. Das gleiche gilt für A_{c_2} . Damit sind die Fallunterscheidungen und nichtanalytischen Terme in (4.26) auf den Term $|\chi_{01}|$ reduziert. $(\tilde{A}_e - \tilde{A}_{c_2})/\chi_{01}$ lässt sich immer kürzen, (4.26) gilt also auch für $\chi_{01} = 0$, nicht nur im Limes. (4.24) lässt sich nun umsortieren zu:

$$A = \sum_{g \in H} gA_e = \sum_{g \in H'} g\left(A_e + A_{c_2}\right)$$
$$= \sum_{g \in H'} g\left[\frac{1}{2}\left(\tilde{A}_e + \tilde{A}_{c_2}\right) + \frac{1}{2}\frac{\left(\tilde{A}_e - \tilde{A}_{c_2}\right)}{\chi_{01}} \left|\chi_{01}\right|\right]$$
(4.27)

Dabei ist H' die Untermenge von H ohne Spiegelungen.

Durch den zweiten Term in (4.27) können nach der Gruppensummation neben den quadratischen Beiträgen, wie man sie von der verallgemeinerten Elastizitätstheorie erwartet, auch nichtanalytische Terme auftreten, wie die Locked-State-Theorie sie fordert. (4.27) hat nach der Entwicklung bis zweiter Ordnung allgemein folgende Form:

$$A = a_0 + a_1 \langle |\chi_{01}| \rangle_{D_{10}} + a_2 \boldsymbol{\chi}^{(6)^2} + a_3 \boldsymbol{\chi}^{(8)^2} + a_4 \langle \chi_{11} |\chi_{01}| \rangle_{D_{10}} + O(\boldsymbol{\chi}^3)$$
(4.28)

$$\langle x \rangle_{D_{10}} := \frac{1}{20} \sum_{g \in D_{10}} gx$$
 (4.29)

Der lineare nichtanalytische Term ist die D_{10} -Norm, die proportional zur Dichte der Matching-Rules-Verletzungen ist (siehe Abschnitt 3.3).

Eine Variante des aufgezeigten Falls eines entarteten Akzeptanzbereiches zeigt Abbildung 4.14, bei dem der Akzeptanzbereich für $\chi_{01} < 0$ nicht verschwindet, sondern seine Gestalt ändert. Das Vorgehen ist analog, man muss (4.26) nur für beide möglichen Formen ansetzen.

4.3.2 Berechnung für Abschneideradius 8

Wie in Abschnitt 4.3.1.1 beschrieben, werden zunächst die im Binärtiling vorkommenden Abstände bis zum Abschneideradius $R_c = 8$ berechnet. Als maximale phasonische Verzerrung wählen wir $\chi_{\text{max}} = 0.10$. Das führt zunächst zu 145 Abstandsvektoren, die paarweise symmetrieinäquivalent sind. Davon treten 31 tatsächlich als Abstand zwischen zwei großen Atomen auf, 62 als Abstand zwischen zwei kleinen Atomen und 47 als Abstand zwischen einem großen und einem kleinen Atom. Insgesamt 38 dieser Abstandsvektoren haben entartete Akzeptanzbereiche, die nach (4.27) berechnet werden müssen. Die Akzeptanzbereiche der restlichen 102 Abstandsvektoren werden direkt mit (4.24) berechnet.

Nach der Berechnung aller Akzeptanzbereiche und Entwicklung bis zweiter Ordnung in der phasonischen Verzerrung erhält man schließlich für

4.3. BESCHRÄNKUNG AUF PAARPOTENTIALE

die freie elastische Energiedichte:

$$f = f_0 + \mu_1 \langle |\chi_{01}| \rangle_{D_{10}} + \frac{1}{2} \lambda_7 \boldsymbol{\chi}^{(6)^2} + \frac{1}{2} \lambda_9 \boldsymbol{\chi}^{(8)^2} + \frac{1}{2} \mu_2 \langle \chi_{11} | \chi_{01} | \rangle_{D_{10}} + O\left(\boldsymbol{\chi}^3\right)$$
(4.30)

$$\lambda_7 = \sum_{ab,r} \alpha_{ab,r}^{(7)} \varphi_{ab}\left(r\right) \tag{4.31}$$

$$\lambda_9 = \sum_{ab,r} \alpha_{ab,r}^{(9)} \varphi_{ab} \left(r \right) \tag{4.32}$$

$$\mu_{1/2} = c_{1/2} \sum_{ab,r} \beta_{ab,r} \varphi_{ab} \left(r \right) \tag{4.33}$$

Die Koeffizienten $\alpha_{ab,r}^{(7)}$, $\alpha_{ab,r}^{(9)}$ und $\beta_{ab,r}$ sind in Abbildung 4.15 in Diagrammen gezeigt sowie in Anhang C tabelliert. Wie man in (4.33) sieht, unterscheiden sich die Konstante μ_1 des linearen nichtanalytischen Terms und die des quadratischen nichtanalytischen Terms (μ_2) nur durch einen Faktor ($c_1 = 0.0124$, $c_2 = 0.4025$).

Geht man zu Abschneideradien größer 5, erhält man also neben den quadratischen Beiträgen, wie sie von der erweiterten Elastizitätstheorie gefordert werden, auch nichtanalytische, wie sie die Locked-State-Theorie fordert. Allerdings bestehen bei einem Abschneideradius von 8 die elastischen Konstanten λ_7 und λ_9 bereits aus 140 Beiträgen von verschiedenen Abständen, während zu den Konstanten der nichtanalytischen Terme $\mu_{1/2}$ lediglich zwölf Abstände beitragen.

Untersucht man, in welchen Konfigurationen die Abstände auftreten, die zu den nichtanalytischen Termen führen, so findet man, dass diese exakt die Matching-Rules des Modellquasikristalls nachbilden (Abbildung 4.16). Die neun Abstände mit negativem Koeffizient sind die Abstände von zwei Atomen aus jeweils einem Oktagon in erlaubter Konfiguration, die mit positivem Koeffizient entsprechend bei verbotener Konfiguration.

Wie man sieht, liegen ein zu diskriminierender Abstand aus der verbotenen Konfiguration und ein zu bevorzugender Abstand aus der erlaubten Konfiguration jeweils sehr nahe beieinander. Trotzdem sollte



Abbildung 4.15: Koeffizienten für die Berechnung der elastischen Konstanten λ_7 , λ_9 und $\mu_{1/2}$. Die Koeffizienten α sind mit 1/r skaliert.



Abbildung 4.16: Auftreten der Abstände, die zu den Konstanten der nichtanalytischen Terme beitragen. Von den neun Abständen sind der AA-Abstand, der kürzeste BB-Abstand sowie einer der kürzeren AB-Abstände gezeigt.



Abbildung 4.17: Testpotentiale, die die erlaubten Abstände bevorzugen, die verbotenen bestrafen.

es mit sehr speziellen Potentialen möglich sein, ein nichtanalytisches Verhalten der freien Energie als Funktion der phasonischen Verzerrung zu erzeugen (die bisherigen Relaxationssimulationen zeigten ja immer linear-elastisches Verhalten). Zu diesem Zweck wurden zu den originalen Lennard-Jones-Potentialen kleine Modulationen hinzugefügt, die genau diese Auswahl treffen (siehe Abbildung 4.17).

Tatsächlich erhält man mit diesen Potentialen ein perfekt nichtanalytisches Verhalten, wie es von der Locked-State-Theorie vorausgesagt wird, das auch Relaxationssimulationen stand hält (Abbildung 4.18).

Damit ist gezeigt, dass ein nichtanalytisches Verhalten mit Paarpotentialen, und damit natürlich auch mit komplexeren Wechselwirkungen, erzeugt werden kann. Die Forderung dafür sind starke Gradienten der Potentiale bei relativ großen Abständen, die zudem sehr exakt positioniert sein müssen. Verschiebt man sie etwa um 2%, bewirken sie das Gegenteil und bestrafen die Konfiguration, die den Quasikristall erzwingt. Die gezeigten Abstände von circa 6 verbieten zudem nur eine Matching-Rules-Verletzung. Um den Quasikristall zu stabilisieren, muss das Potential entsprechende Eigenschaften auch bei einem Abstand von 10 sowie in der Nähe des doppelten Matching-Rules-Radius haben (ca. 16), damit bei allen drei Clustern aus Abbildung 2.23 die richtige Orientierung



Abbildung 4.18: Freie elastische Energie als Funktion der phasonischen Verzerrung mit den Testpotentialen aus Abbildung 4.17 nach Relaxation.

der Oktagone erzwungen wird. Zudem wurde hier nur die Eigenschaft herausgestellt, die den Quasikristall gegen Approximanten mit kleiner phasonischer Verzerrung bevorzugt. Damit der Quasikristall Grundzustand ist, muss der Quasikristall auch energetisch günstiger sein als zum Beispiel die einfachen Kristalle der Binärtiling-Familie. Die Potentiale müssen also zunächst darauf optimiert sein, alle im Quasikristall auftretenden Abstände entsprechend ihrer Häufigkeit zu begünstigen. Das heißt, die eigentlichen elastischen Konstanten, die ja den Hauptbeitrag zur elastischen Energie liefern, müssen zunächst positiv sein. Erst wenn diese die lokalen Umgebungen des Quasikristalls erzwingen, können die nichtanalytischen Terme die langreichweitige Ordnung einstellen.

Kapitel 5

Grundzustände aus Monte-Carlo-Simulationen

Die Entwicklung der freien elastischen Energiedichte in der phasonischen Verzerrung ist nur sinnvoll, wenn der Quasikristall der Grundzustand ist. Die Approximanten mit kleiner phasonischer Verzerrung sind dann angeregte Zustände, die im Zustandsraum nahe am Grundzustand liegen. Wenn man eine negative Phason-elastische Konstante hat wie in Kapitel 4.1, weiss man sicher, dass der Quasikristall nicht der Grundzustand ist (schon die Approximanten haben eine geringere freie Energie). Aber auch, wenn alle Phason-elastischen Konstanten positiv sind, ist noch nicht sichergestellt, dass der Quasikristall der Grundzustand ist. Mit der Beschreibung der vierdimensionalen phasonischen Verzerrung erreicht man nur wenige ausgezeichnete Zustände aus dem viel höherdimensionalen Zustandsraum. Deshalb ist es wichtig, neben der Analyse der Phason-elastischen Energie für jede Kombination von Konfiguration und Potential auch den Grundzustand zu bestimmen.

Die zunächst naheliegendste Methode, den Grundzustand zu bestimmen, ist mit Molekulardynamik-Simulationen, etwa durch Anlassen bei hohen Temperaturen oder durch Kühlen aus der Schmelze. Allerdings ist der Grundzustand durch Molekulardynamik-Simulationen kaum zu erreichen. Zum einen sind die realen Zeitskalen, die man mit solchen Simulationen abdecken kann, sehr klein (in der Regel im Nanosekunden-Bereich), sodass Kühlsimulationen Abschreckexperimenten entsprechen, die Schmelze also im Wesentlichen nur eingefroren wird. Außerdem ist unsere Struktur sehr dicht gepackt, sodass atomare Sprünge oder gar Diffusion während einer Molekulardynamik-Simulation praktisch nicht beobachtet werden, was für eine Phasenumwandlung durch Anlassen nötig wäre.

Wir nehmen nun an, dass unser Modellsystem nur Binärtiling-Zustände einnimmt. Das wurde für die Lennard-Jones-Potentiale (Abbildung 4.1) in verschiedenen Simulationen gezeigt [22, 39, 23] und ist auch nicht verwunderlich, da diese Potentiale genau dafür konstruiert wurden [21, 39]. Die Potentialminima wurden so gewählt, dass in einer Binärtilingkonfiguration alle nächsten Nachbarn in den Minima liegen. Um einer Entmischung von großen und kleinen Atomen entgegenzuwirken, wurde das Energieminimum des gemischten Potentials doppelt so tief gewählt wie die beiden anderen. Solange unsere modifizierten Potentiale das gleiche erste Minimum haben wie die Lennard-Jones-Potentiale und die ersten Minima immer noch mit Abstand den Hauptbeitrag zur Bindungsenergie leisten, gilt die Annahme auch für diese Potentiale.

Damit können wir diskrete Monte-Carlo-Simulationen auf dem Ensemble der Binärtilings machen. Mit diesen kann man viel mehr Zustände erreichen als zum Beispiel mit Molekulardynamik. Den Grundzustand finden wir durch Kühlen während der Simulation.

5.1 Grundlagen

Monte-Carlo-Simulationen bauen auf den Prinzipien der Statistischen Mechanik auf. Zunächst muss man das Ensemble aller Zustände definieren, die das System einnehmen kann. Im statistischen Gleichgewicht hat jeder Zustand μ eine (zeitlich konstante) Besetzungswahrscheinlichkeit p_{μ} . Obwohl die Besetzungswahrscheinlichkeiten zeitlich konstant sind, gibt es Übergänge zwischen den einzelnen Zuständen. Diese werden mit Übergangsraten beschrieben, $R(\mu \rightarrow \nu)$ gibt an, wie oft das System statistisch vom Zustand μ in den Zustand ν pro Zeiteinheit wechselt.

Eine Forderung, die ein wenig über die des statistischen Gleichgewichts hinausgeht, ist das detaillierte Gleichgewicht. Es wird gefordert, dass das System genauso oft vom Zustand μ in den Zustand ν wechselt wie umgekehrt. Da das System nur von μ nach ν wechseln kann, wenn es vorher im Zustand μ war, gibt das Produkt $p_{\mu}R(\mu \rightarrow \nu)$ an, wie oft tatsächlich das System von μ nach ν wechselt. Die Forderung für detailliertes Gleichgewicht lautet also:

$$p_{\mu}R(\mu \to \nu) = p_{\nu}R(\nu \to \mu) \tag{5.1}$$

Für das statistische Gleichgewicht muss diese Forderung nur in der Summe über alle Zustände erfüllt sein (das System muss so oft von einem Zustand in einen beliebigen anderen übergehen wie von allen anderen

5.1. GRUNDLAGEN

in den einen), für das detaillierte Gleichgewicht muss die Forderung für jedes Paar von Zuständen erfüllt sein.

In Monte-Carlo-Simulationen hat man in der Regel nicht alle Zustände tabellarisch vorliegen. Man lässt deshalb in einem Simulations-Schritt nicht den Wechsel zu einem beliebigen anderen Zustand zu, sondern hat einen Mechanismus, einen sogenannten Markov-Prozess, mit dem man bestimmte benachbarte Zustände erreicht. Der Markov-Prozess muss dergestalt sein, dass man durch Aneinanderreihung (Markov-Kette) von einem Zustand zu jedem beliebigen kommt (Ergodizität). Dabei muss natürlich für jeden Einzelschritt die Übergangswahrscheinlichkeit größer null sein.

Im kanonischen Ensemble (konstantes Volumen, konstante Teilchenzahl, konstante Temperatur) gilt im statistischen Gleichgewicht für die Besetzungswahrscheinlichkeiten eine Boltzmann-Verteilung. Wenn der Zustand μ also die Energie E_{μ} hat, ist seine Besetzungswahrscheinlichkeit

$$p_{\mu} = \frac{1}{Z} e^{-E_{\mu}/k_{\rm B}T}$$
(5.2)

Dabei ist T die Temperatur und $k_{\rm B}$ der Boltzmann-Faktor. Der Normierungsfaktor Z ist die Zustandssumme.

Fordern wir für ein kanonisches Ensemble detailliertes Gleichgewicht, so folgt aus (5.1) und (5.2) für das Verhältnis der Übergangsraten:

$$\frac{R(\mu \to \nu)}{R(\nu \to \mu)} = \frac{p_{\nu}}{p_{\mu}} = e^{-\Delta E/k_{\rm B}T}$$
(5.3)

mit $\Delta E = E_{\nu} - E_{\mu}$. Um möglichst viele Zustände zu durchlaufen, wollen wir in der Simulation möglichst große Übergangsraten haben. Sei $E_{\nu} \geq E_{\mu}$ ($\Delta E \geq 0$). Dann wählen wir $R(\nu \to \mu) = 1$ und somit $R(\mu \to \nu) = e^{-\Delta E/k_{\rm B}T}$. Sinkt die potentielle Energie also bei einem Übergang, wird dieser immer durchgeführt. Steigt die potentielle Energie, findet der Übergang mit einer Wahrscheinlichkeit $e^{-|\Delta E|/k_{\rm B}T}$ statt. Diese Wahl der Übergangsraten für die Simulation nennt man Metropolis-Algorithmus [26].

5.2 Vorgehen

Als Startkonfiguration wählen wir einen periodischen Approximanten des Mikulla-Roth-Tilings. Das Ensemble sind alle Binärtilings mit denselben periodischen Randbedingungen wie die Startkonfiguration, also alle Zustände zu einer konstanten globalen phasonischen Verzerrung. Als Markov-Prozess wird der Oktagon-Flip verwendet (Abbildung 2.20), von dem angenommen wird, dass er für die Binärtilings ergodisch ist (Abschnitt 2.11).

Die Simulation startet bei sehr hoher Temperatur. Dabei wird die Konfiguration vollkommen randomisiert und hat mit dem Approximanten bis auf die Randbedingungen nichts mehr zu tun. Dann wird die Temperatur in kleinen Schritten erniedrigt bis praktisch keine Übergänge mehr stattfinden, wobei die Simulation bei jeder Temperatur einige hundert bis tausend Schritte pro Gitterpunkt läuft, sodass man sich für diese Temperatur im Gleichgewicht befindet, bevor man zur nächstniedrigeren Temperatur wechselt.

Der gefundene Zustand mit niedrigster potentieller Energie muss nicht zwangsläufig der absolute Grundzustand unter den gegebenen Randbedingungen sein. Zum einen ist nicht klar, ob es bei der verwendeten recht kleinen Potentialreichweite und für die vorgegebenen periodischen Randbedingungen einen nicht entarteten Grundzustand gibt, zum anderen reicht eine einfache Kühlsimulation in der Regel nicht, um einen defektfreien Grundzustand zu erreichen. Es geht vielmehr darum, ein Gefühl dafür zu bekommen, wie weit die quasikristallinen Konfigurationen energetisch von den Tieftemperaturzuständen entfernt sind sowie darum, welche lokalen Umgebungen bei diesen auftreten.

Um zu überprüfen, ob die Ergebnisse repräsentativ für Tieftemperaturzustände sind, wurden die Simulationen mit verschiedenen Parametern wiederholt. Variiert wurden die Initialisierung des Zufallsgenerators, die Starttemperatur, die Kühlrate sowie die Anzahl der Simulationsschritte bei einer Temperatur. Außerdem wurden die Simulationen für drei verschiedene Approximanten, also drei verschiedene Simulationsboxen durchgeführt.

5.3 Ergebnisse

Als Anfangskonfigurationen wurden drei Approximanten des Mikulla-Roth-Tilings mit 1686, 4414 und 11556 Atomen verwendet. Als Potentiale dienten einmal die üblichen Lennard-Jones-Potentiale und die Lennard-Jones-Dzugutov-Potentiale (siehe Abbildung 4.12), jeweils mit Abschneideradius 1.92, wie sie in Abschnitt 4.2.3 verwendet wurden.

Für die Lennard-Jones-Potentiale wurde das System von Lee et al. schon auf Grundzustände untersucht [23]. Beschreibt man die Binärtilings als Hexagon-Boot-Stern-Tiling, so ist der Grundzustand je nach Stöchiometrie ein Kristall aus Hexagonen oder Booten oder einer Mischung aus Hexagonen und Booten. Unsere Simulationen bestätigen die Ergebnisse von Lee et al. (siehe Abbildung 5.3). Es kommt zwar zu keiner weitreichenden Ordnung, wohl weil der Abschneideradius für das Potential sehr kurz ist, aber die Sterne sind fast vollständig verschwunden. Die zehnzähligen Umgebungen von den großen Atomen, die für die quasikristallinen Konfigurationen typisch sind, tauchen gar nicht mehr auf. Andeutungsweise sind kleine Kristallite aus Booten zu beobachten. Abbildung 5.1 zeigt die potentielle Energie während der Abkühlsimulationen. Zum Vergleich sind die potentiellen Energien der quasikristallinen Konfigurationen eingezeichnet. Man sieht, dass deren Energie höher liegt als selbst die bei sehr hohen Temperaturen.

Der Grundzustand für die modifizierten Potentiale zeigt sehr viel mehr Ähnlichkeit mit den quasikristallinen Konfigurationen. Die lokalen Umgebungen mindestens bis zum Abschneideradius sind die Gleichen. Mit bloßem Auge sind Grundzustand und Approximant praktisch nicht zu unterscheiden. Um die Ordnung auf größerer Skala diskutieren zu können, zeichnen wir das in Abschnitt 2.9 eingeführte Supertiling ein (Abbildung 2.21). Der Grundzustand (Abbildung 5.4) weist die gleichen Supertiles auf, die bei den quasikristallinen Konfigurationen auftauchen, allerdings mit ein paar Defekten (gelb). Auch scheint die dicke Rhombe bevorzugt zu sein und neigt dazu, sich periodisch anzuordnen. Die Grundzustände sehen für die verschiedenen Boxgrößen praktisch gleich aus, insbesondere die Häufigkeit der Supertiles und die Defektdichte sind dieselben, sodass ausgeschlossen werden kann, dass sich die Defekte nur aufgrund von Frustrationseffekten aufgrund der periodischen Ränder bilden.

Abbildung 5.2 zeigt wiederum die potentielle Energie während der Abkühlsimulation. Die Energien der quasikristallinen Konfigurationen liegen jetzt deutlich näher am Grundzustand und deutlich unter denen der Hochtemperaturzustände.



Abbildung 5.1: Potentielle Energie über $1/k_BT$ für die Konfiguration mit 4414 Atomen und Lennard-Jones-Potentialen. Rot sind Minimum und Maximum für jede Temperatur gezeigt, grün die Varianz um den Mittelwert. Zum Vergleich sind die potentiellen Energien des Mikulla-Roth-Tilings (violett) und des Gähler-Baake-Tilings (blau) eingezeichnet.



Abbildung 5.2: Potentielle Energie über $1/k_{\rm B}T$ für die Konfiguration mit 4414 Atomen und den modifizierten Potentialen. Darstellung wie in 5.1.



Abbildung 5.3: Grundzustand der Binärtilings mit Lennard-Jones-Potentialen für die Konfiguration mit 4414 Atomen. Es gibt keine zehnzähligen Umgebungen und fast keine fünfzähligen mehr, aber kleine Boot-Kristallite.

5.3. ERGEBNISSE



Abbildung 5.4: Grundzustand der Binärtilings mit den modifizierten Lennard-Jones-Dzugutov-Potentialen für die Konfiguration mit 4414 Atomen. Die lokalen Umgebungen entsprechen sehr gut denen im Quasikristall. Erst im Supertiling findet man Fehler.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Die Relaxationssimulationen (Abschnitt 4.1) und die Entwicklung für kleinere Abschneideradien (Abschnitt 4.2.3) ergeben eine quadratische Abhängigkeit der freien elastischen Energiedichte von der phasonischen Verzerrung bei Temperatur null. Über dieses quadratische Verhalten können bei entsprechender Wahl der Potentiale (Abschnitt 4.2.3) lokale Umgebungen favorisiert werden. Die Radien dieser Umgebungen liegen in der Größenordnung des Abschneideradius der Potentiale. Das Resultat ist ein Supertile-Random-Tiling (Kapitel 5), eine weit reichende quasiperiodische Ordnung kann nicht erzeugt werden.

Erst bei sehr großen Abschneideradien der Potentiale, deutlich größer als man sie üblicherweise annimmt, zeigt die freie elastische Energiedichte nichtanalytisches Verhalten in der phasonischen Verzerrung (Abschnitt 4.3.2), wie es benötigt wird, um mit einer endlichen Reichweite der Wechselwirkung eine perfekte quasiperiodische Ordnung zu erzeugen. Die Potentiale müssen starke Gradienten aufweisen, die bei diesen großen Abständen sehr genau positioniert sein müssen. Unser Modell hat zwar einen ungewöhnlich großen Matching-Rules-Radius, aber auch Matching-Rules-Radien anderer Modelle sind zu groß, als dass man annehmen könnte, dass die Wechselwirkung bei diesen Abständen für die langreichweitige Ordnung zuständig ist. Ähnlich kann man argumentieren, wenn man statt Paarpotentialen Mehrkörper-Wechselwirkungen verwendet. Dort würde zwar prinzipiell die halbe Reichweite ausreichen, was aber immer noch sehr große Abstände sind. Hinzu kommt, dass die Wechselwirkung dann nicht nur auf Abstände, sondern auch auf Winkel ungewöhnlich empfindlich sein müsste. Auch wenn für sehr kleine phasonische Verzerrungen der lineare Term immer stärker zum Tragen kommt als die quadratischen, haben diese doch ein sehr viel höheres Gewicht.

Aus diesen Ergebnissen kann man schließen, dass der Locked-State wohl ein akademisches Modell ist, reale Tieftemperatur-Quasikristalle muss man sich als eingefrorene Supertile-Random-Tilings mit globaler phasonischer Verzerrung null und kleinen Fluktuationen vorstellen.

Anhang A

Die Diedergruppe D_{10}

Die Diedergruppe D_{10} ist die volle Punktsymmetriegruppe des regelmäßigen Zehnecks im zweidimensionalen Raum (Abbildung A.1). Ihre Elemente sind Drehungen c_{10}^i um Vielfache von 36° sowie Spiegelungen $c_2^{(j)}$ an den Winkelhalbierenden und den Seitenmitten, sie hat also 20 Elemente. Erzeugt wird sie durch die Drehung c_{10} und eine der Spiegelungen c_2 :

$$D_{10} = \langle c_{10}, c_2 \mid c_{10}^{10} = c_2^2 = (c_{10}c_2)^2 = e \rangle$$
(A.1)

 D_{10} und die isomorphe Gruppe C_{10v} unterscheiden sich in ihren natürlichen Darstellungen nur im Dreidimensionalen. Die beschriebenen Spiegelungen werden für die Diedergruppe im Dreidimensionalen als zweizählige Drehungen um die Winkelhalbierenden beziehungsweise Seitenmitten beschrieben, während sie für die Gruppe C_{10v} dreidimensionale Spiegelungen sind. Die volle Symmetriegruppe des regelmäßigen Zehnecks im Dreidimensionalen ist D_{10h} , die sowohl die zweizähligen Drehungen wie die Spiegelungen enthält.



Abbildung A.1: Symmetrieelemente von D_{10} .

Darstellungen und Charaktertafel

Jede gerade Diedergruppe D_{2n} hat vier eindimensionale irreduzible Darstellungen Γ_1 bis Γ_4 und n-1 zweidimensionale Γ_5 bis Γ_{3+n} [30]. Die

D_{10}	e	$c_{10}^{2j}c_2$	$c_{10}^{2j+1}c_2$	c_{10}^{5}	c_{10}, c_{10}^9	c_{10}^3, c_{10}^7	c_{10}^2, c_{10}^8	c_{10}^4, c_{10}^6	
(20)	(1)	(5)	(5)	(1)	(2)	(2)	(2)	(2)	
Γ_1	1	1	1	1	1	1	1	1	$f, \varepsilon^{(1)}$
Γ_2	1	-1	-1	1	1	1	1	1	z^{\parallel}
Γ_3	1	1	-1	-1	-1	-1	1	1	
Γ_4	1	-1	1	-1	-1	-1	1	1	
Γ_5	2	0	0	-2	au	-1/ au	1/ au	- au	$m{r}^{\parallel}$
Γ_6	2	0	0	2	1/ au	- au	- au	1/ au	$oldsymbol{arepsilon}^{(6)},oldsymbol{\chi}^{(6)}$
Γ_7	2	0	0	-2	-1/ au	au	- au	1/ au	r^{\perp}
Γ_8	2	0	0	2	- au	1/ au	1/ au	- au	$oldsymbol{\chi}^{(8)}$

Tabelle A.1: Charaktertafel von D_{10} .

zweidimensionalen Darstellungen sind Ebenendarstellungen, die sich im Drehwinkel der erzeugenden Drehung c_{2n} unterscheiden. Γ_1 ist die Einsdarstellung, Γ_2 die Darstellung der Hauptdrehachse. Γ_3 und Γ_4 zusammen sind eine Ebenendarstellung, bei der c_{2n} als Drehung um 180° wirkt.

 D_{10} hat also acht irreduzible Darstellungen, deren Charaktere in Tabelle A.1 angegeben sind. Die eindimensionalen Darstellungen sind natürlich gleich ihren Charakteren. Die zweidimensionalen Darstellungen sind abhängig vom gewählten Koordinatensystem. Die Erzeugenden haben folgende Darstellungen:

$$\Gamma_{(4+j)}(c_2) = \mathbf{R}(\varphi) \begin{pmatrix} 1 & 0\\ 0 & -1 \end{pmatrix} \mathbf{R}(-\varphi)$$
(A.2)

$$\Gamma_{(4+j)}(c_{10}) = \mathbf{R}(\pm j \frac{2\pi}{10})$$
(A.3)
$$\mathbf{R}(\alpha) := \begin{pmatrix} \cos \alpha & -\sin \alpha \\ \sin \alpha & \cos \alpha \end{pmatrix}$$

Der Winkel φ und die Drehrichtung bei den Darstellungen von c_{10} werden durch das Koordinatensystem bestimmt.

Für die in dieser Arbeit verwendete Koordinatenbasis (2.6ff) gilt für die Darstellung Γ_5 des physikalischen Raums $\varphi = 0$ und positive Drehrichtung, für die Darstellung Γ_7 des Orthogonalraums gilt ebenfalls $\varphi = 0$, aber die Drehrichtung ist negativ. Anhang B

Symmetrieangepasste Basis des Verzerrungstensors

Der verallgemeinerte Verzerrungstensor (3.16) hat sieben Komponenten:

$$\boldsymbol{\eta} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{00} & \varepsilon_{01} \\ \varepsilon_{01} & \varepsilon_{11} \\ \chi_{00} & \chi_{01} \\ \chi_{10} & \chi_{11} \end{pmatrix}$$
(B.1)

Bezüglich der Tensorbasis

$$\mathcal{B} = \left\{ \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 1 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \right\}$$
(B.2)

kann man die Verzerrung als siebendimensionalen Komponentenvektor schreiben:

$$\boldsymbol{\eta} = \left(\varepsilon_{00}, \varepsilon_{11}, \sqrt{2}\varepsilon_{01}, \chi_{00}, \chi_{11}, \chi_{01}, \chi_{10}\right)^T$$
(B.3)

Unter der Gruppe D_{10} zerfällt dieser siebendimensionale Vektorraum in einen eindimensionalen und drei zweidimensionale invariante Unterräume. Die symmetrieangepasste Basis lautet:

$$\tilde{\mathcal{B}} = \left\{ \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}; \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}; \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}, \frac{-1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}; \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 1 \\ -1 & 0 \end{pmatrix} \right\}$$
(B.4)

Die Verzerrungskomponenten in der symmetrieangepassten Basis benennen wir nach den zugehörigen irreduziblen Darstellungen (siehe Anhang A):

$$\tilde{\boldsymbol{\eta}} = \left(\varepsilon^{(1)}, \varepsilon^{(6)}_1, \varepsilon^{(6)}_2, \chi^{(6)}_1, \chi^{(6)}_2, \chi^{(8)}_1, \chi^{(8)}_2\right)^T \tag{B.5}$$

84 ANHANG B. Symmetrieangepasste Basis des Verzerrungstensors

Die Transformation von der kanonischen Basis in die symmetrieangepasste lautet:

$$\varepsilon^{(1)} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\varepsilon_{00} + \varepsilon_{11}) \tag{B.6}$$

$$\varepsilon_1^{(6)} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\varepsilon_{00} - \varepsilon_{11}) \tag{B.7}$$

$$\varepsilon_2^{(6)} = \sqrt{2}\varepsilon_{01} \tag{B.8}$$

$$\chi_1^{(6)} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\chi_{00} - \chi_{11}) \tag{B.9}$$

$$\chi_2^{(6)} = \frac{-1}{\sqrt{2}} (\chi_{01} + \chi_{10}) \tag{B.10}$$

$$\chi_1^{(8)} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\chi_{00} + \chi_{11}) \tag{B.11}$$

$$\chi_2^{(8)} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\chi_{01} - \chi_{10}) \tag{B.12}$$

Anhang C

Koeffizienten der freien Energiedichte

Ergänzend zu Abbildung 4.15 werden hier die Koeffizienten für die Gleichungen (4.31ff) angegeben. Neben den Koeffizienten $\alpha_{ab,r}^{(n)}$ und $\beta_{ab,r}$ ist auch die Paarverteilungsfunktion $g_{ab,r}$ des Mikulla-Roth-Tilings angegeben, sie ergibt gewichtet mit den Potentialen die Bindungsenergie f_0 des perfekten Quasikristalls in (4.30):

$$f_0 = \sum_{ab,r} g_{ab,r} \varphi_{ab} \left(r \right) \tag{C.1}$$

r	$g_{AA,r}$	$\alpha^{(7)}_{AA,r}$	$\alpha^{(9)}_{AA,r}$	$c_1\beta_{AA,r}$	$c_2\beta_{AA,r}$
1.176	0.761	-0.470	0.470	0.0000	0.000
1.902	1.472	-2.382	-1.021	0.0000	0.000
2.236	0.489	-0.115	-0.773	0.0000	0.000
2.526	0.099	2.883	3.922	0.0000	0.000
2.936	0.543	-0.709	2.486	0.0000	0.000
3.078	1.942	-1.621	-1.782	0.0000	0.000
3.618	1.250	-0.586	-0.302	0.0000	0.000
3.804	0.390	1.652	0.451	0.0000	0.000
4.088	1.682	-2.722	-1.484	0.0000	0.000
4.253	0.210	-0.340	2.443	0.0000	0.000
4.750	2.155	-4.577	-1.913	0.0000	0.000
4.980	2.245	-8.958	-4.653	0.0000	0.000
5.250	0.307	5.159	1.332	0.0000	0.000
5.459	0.888	2.697	3.794	0.0000	0.000
5.584	0.076	15.094	12.127	0.0000	0.000
5.854	1.812	-13.251	-8.908	-0.0124	-0.403
5.899	0.000	11.080	11.080	0.0124	0.403
5.971	1.215	-6.099	-0.392	0.0000	0.000
6.155	1.193	-7.256	-6.354	0.0000	0.000
6.549	0.359	17.679	9.711	0.0000	0.000
6.614	3.043	-15.576	-11.814	0.0000	0.000
6.882	1.025	-15.354	-15.269	0.0000	0.000
6.982	0.581	-2.462	2.462	0.0000	0.000
7.140	1.343	-5.548	-8.935	0.0000	0.000
7.236	0.123	10.368	15.415	0.0000	0.000
7.482	0.052	27.306	33.941	0.0000	0.000
7.686	3.379	-25.080	-26.488	0.0000	0.000
7.775	1.119	6.129	8.354	0.0000	0.000
7.863	0.179	4.608	9.875	0.0000	0.000
8.057	2.436	-13.072	-17.552	0.0000	0.000
8.090	0.012	13.591	12.192	0.0000	0.000

$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$						
$ \begin{array}{ c c c c c c c c c c c c c c c c c c c$	r	$g_{AB,r}$	$\alpha_{AB,r}^{(7)}$	$\alpha^{(9)}_{AB,r}$	$c_1\beta_{AB,r}$	$c_2\beta_{AB,r}$
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	1.000	2.462	0.581	-0.581	0.0000	0.000
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	1.543	1.040	4.404	2.401	0.0000	0.000
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	1.940	0.061	4.635	3.946	0.0000	0.000
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	2.149	2.906	-3.011	-2.018	0.0000	0.000
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	2.618	3.242	-5.415	-9.971	0.0000	0.000
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	2.870	1.820	-1.592	-6.989	0.0000	0.000
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	3.101	0.137	1.130	3.899	0.0000	0.000
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	3.236	1.919	1.291	-3.067	0.0000	0.000
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	3.443	0.841	-1.361	3.960	0.0000	0.000
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	3.754	2.264	4.116	1.866	0.0000	0.000
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	3.933	0.383	1.072	4.910	0.0000	0.000
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	4.041	5.246	-2.401	-6.011	0.0000	0.000
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	4.369	0.146	6.940	3.756	0.0000	0.000
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	4.466	3.190	5.059	5.637	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	4.618	0.903	22.455	7.051	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	4.854	0.888	2.697	3.794	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	4.994	0.128	13.919	6.811	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	5.079	4.311	-9.155	-3.827	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	5.213	1.139	-21.193	-12.518	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	5.550	0.412	24.968	12.860	0.0248	0.805
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	5.626	6.040	-58.459	-53.283	-0.0248	-0.805
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	5.748	1.574	-2.115	-4.375	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	5.939	3.634	-7.833	-12.898	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	6.167	0.023	24.733	25.907	0.0248	0.805
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	6.236	3.350	-18.882	-18.946	-0.0248	-0.805
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	6.346	0.307	18.854	15.027	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	6.520	1.069	43.921	44.546	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	6.689	3.043	-15.576	-11.814	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	6.792	0.538	22.287	19.587	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	6.854	3.379	-52.470	-53.878	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	6.893	0.009	52.055	51.066	0.0000	0.000
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	6.954	1.700	17.362	24.511	0.0000	0.000
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	7.113	4.110	-23.057	-23.707	0.0000	0.000
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	7.305	0.023	27.183	24.385	0.0000	0.000
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	7.363	2.576	-16.172	-35.396	0.0000	0.000
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	7.513	5.625	-67.589	-83.872	0.0000	0.000
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	7.605	1.367	21.635	15.450	0.0000	0.000
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	7.839	1.358	-16.725	-21.921	0.0000	0.000
$ \begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	7.980	2.079	-30.586	-20.982	0.0000	0.000
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	8.067	0.341	36.989	61.343	0.0000	0.000
$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	8.119	4.567	-8.053	-20.913	0.0000	0.000
$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$						
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	r	$g_{BB,r}$	$\alpha_{BB,r}^{(7)}$	$\alpha^{(9)}_{BB,r}$	$c_1\beta_{BB,r}$	$c_2\beta_{BB,r}$
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	0.618	0.470	0.761	-0.761	0.0000	0.000
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	1.176	0.421	-0.681	-2.722	0.0000	0.000
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	1.618	1.151	-3.468	-4.225	0.0000	0.000
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	1.902	1.399	-0.911	-4.267	0.0000	0.000
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	2.000	0.199	1.116	-2.004	0.0000	0.000
$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	2.236	0.099	2.883	3.922	0.0000	0.000
2.760 0.061 4.635 3.946 0.0000 0.000	2.497	1.040	4.404	2.401	0.0000	0.000
	2.760	0.061	4.635	3.946	0.0000	0.000

r	$g_{BB,r}$	$\alpha_{BB,r}^{(7)}$	$\alpha^{(9)}_{BB,r}$	$c_1\beta_{BB,r}$	$c_2\beta_{BB,r}$
2.936	0.061	4.635	3.946	0.0000	0.000
3.078	2.004	3.014	-2.538	0.0000	0.000
3.139	0.543	-0.709	2.486	0.0000	0.000
3.477	1.782	0.161	-6.966	0.0000	0.000
3.618	1.101	-0.260	-3.946	0.0000	0.000
3.670	0.199	5.765	-1.560	0.0000	0.000
3.804	0.161	-1.782	0.482	0.0000	0.000
3.854	0.019	-0.876	-0.012	0.0000	0.000
4.088	1.031	-1.406	-6.861	0.0000	0.000
4.134	0.161	-1.782	-2.424	0.0000	0.000
4.236	1.283	-5.534	-6.051	0.0000	0.000
4.253	0.061	-4.664	-6.843	0.0000	0.000
4.396	0.421	-0.681	4.886	0.0000	0.000
4.551	0.052	-1.175	-5.316	0.0000	0.000
4.644	1.446	-16.035	-11.186	0.0000	0.000
4.750	1.735	-3.897	-6.800	0.0000	0.000
4.980	2.471	-2.908	-2.108	0.0000	0.000
5.018	0.666	9.143	-2.652	0.0000	0.000
5 236	1 051	-12 781	-9.378	-0.0124	-0.403
5.250	0.023	16.269	17.443	0.0000	0.000
5.366	0.614	21.397	13.744	0.0124	0.403
5 459	0.307	5 159	1 332	0.0000	0.000
5 571	1.016	16 616	10.605	0.0000	0.000
5 694	0.023	16 269	17.000	0.0000	0.000
5 854	1 829	-4 246	-6 192	-0.0248	-0.805
5 971	0.435	27 542	16 607	0.0248	0.805
6.074	1 522	-0.940	0.940	0.0240	0.000
6 155	1.040	-24 076	-26 649	0.0000	0.000
6 186	0 274	-7 621	1 130	0.0000	0.000
6 364	0.718	21 663	5 728	0.0000	0.000
6 472	0.012	16 207	14 808	-0.0124	-0.403
6.538	2.430	-67.742	-69.090	0.0000	0.000
6.549	0.000	13.695	13.695	0.0000	0.000
6 578	0.000	-2 616	-2.616	0.0124	0.403
6 614	2.917	-21 359	-27 006	0.0000	0.000
6.882	0.809	-27 509	-31 208	0.0000	0.000
6.910	0.181	-0.624	-13.859	0.0000	0.000
6 982	0.023	40.878	38.080	0.0000	0.000
7.070	0.581	-2 462	2 462	0.0000	0.000
7.140	0.634	11.148	22,708	0.0000	0.000
7.167	0.000	13.695	13.695	0.0000	0.000
7 226	1 857	-37 835	-41 124	0.0000	0.000
7.472	1.406	37.965	49.066	0.0000	0.000
7 564	0.009	38 359	37 371	0.0000	0.000
7 686	3 336	-14 026	-23.058	0.0000	0.000
7.710	0.538	8.592	5.892	0.0000	0.000
7.775	0.514	-18.591	-18.493	0.0000	0.000
7.854	0.662	16.344	9.440	0.0000	0.000
7.863	0.009	38.359	37.371	0.0000	0.000
7.942	0.179	4.608	9.875	0.0000	0.000
8.057	2.801	3.407	-11.136	0.0000	0.000
8.081	0.760	2.146	12.338	0.0000	0.000

Literaturverzeichnis

- M. Baake, D. Joseph und M. Schlottmann, The Root Lattice D₄ and Planar Quasilattices with Octagonal and Dodecagonal Symmetry, *Int. Journal Mod. Phys.* B 5 (1991) 1927–1953.
- [2] M. Baake, P. Kramer, M. Schlottmann und D. Zeidler, Planar Patterns with Fivefold Symmetry as Sections of Periodic Structures in 4-Space, Int. J. Mod. Phys. B 4 (1990) 2217–2268.
- [3] M. Duneau und A. Katz, Quasiperiodic Patterns, *Phys. Rev. Lett.* 54 (1985) 2688–2691.
- [4] M. Dzugutov, Glass Formation in a Simple Monoatomic Liquid with Icosahedral Inherent Local Order, *Phys. Rev. A* 46 (1992) R2984– R2987.
- [5] V. Elser, Comment on "Quasicrystals: A New Class of Ordered Structures", *Phys. Rev. Lett.* 54 (1985) 1730.
- [6] V. Elser und C. L. Henley, Crystal and Quasicrystal Structures in Al-Mn-Si Alloys, *Phys. Rev. Lett.* 55 (1985) 2883–2886.
- [7] W. Friedrich, W. P. Knipping und M. Laue, Interferenzerscheinungen bei Röntgenstrahlen, Sitzungsberichte Bayrische Akademie der Wissenschaften (1912) 303–322.
- [8] F. Gähler, M. Baake und M. Schlottmann, Binary Tiling Quasicrystals and Matching Rules, *Phys. Rev. B* 50 (1994) 12458–12467.
- D. Gratias, A. Katz und M. Quiquandon, Geometry of Approximant Structures in Quasicrystals, *Journal Phys. Cond. Matt.* 7 (1995) 9101–9125.
- [10] C. L. Henley, Random Tilings with Quasicrystal Order: Transfer-Matrix Approach, J. Phys. A 21 (1988) 1649–1677.
- [11] C. L. Henley, Random Tiling Models, in *Quasicrystals The State of the Art* (Herausgegeben von D. P. DiVincenzo und P. J. Steinhardt), World Scientific, 1991 429–524.
- [12] C. L. Henley und V. Elser, Quasicrystal Structure of (Al,Zn)₄₉Mg₃₂, *Phil. Mag. B* **53** (1986) L59 L66.

- [13] H. Hiller, The Crystallographic Restriction in Higher Dimensions, Acta Crystallographica A41 (1985) 541–544.
- [14] H. C. Jeong und P. J. Steinhardt, Finite-Temperature Elasticity Phase Transition in Decagonal Quasicrystals, *Phys. Rev. B* 48 (1993) 9394–9403.
- [15] P. A. Kalugin, Phason Disorder in 2d Quasicrystals, JETP Lett. 49 (1989) 467–469.
- [16] A. Katz und M. Duneau, Quasiperiodic Patterns and Icosahedral Symmetry, J. Phys. France 47 (1986) 181–196.
- [17] R. Klitzing und M. Baake, Representation of Certain Self-Similar Quasiperiodic Tilings with Perfect Matching Rules by Discrete Point Sets, *Journal Phys. I France* 4 (1994) 893–904.
- [18] U. Koschella, Zur Phason-Phonon-Kopplung in dekagonalen Quasikristallen, Diplomarbeit, Universität Stuttgart, (2001).
- [19] U. Koschella, F. Gähler, J. Roth und H.-R. Trebin, Phason Elastic Constants of a Binary Tiling Quasicrystal, J. All. Comp. 342 (2002) 287–290.
- [20] U. Koschella, F. Gähler, J. Roth und H.-R. Trebin, Phason-Elastic Energy in a Model Quasicrystal, J. Non-Cryst. Solids 334-335 (2004) 276–279.
- [21] F. Lançon und L. Billard, Thermodynamical Properties of a Two-Dimensional Quasicrystal from Molecular Dynamics Calculations, *Europhys. Lett.* 2 (1986) 625–629.
- [22] F. Lançon und L. Billard, Two-Dimensional System with a Quasi-Crystalline Ground State, J. Phys. France 49 (1988) 249–256.
- [23] H. K. Lee, R. H. Swendsen und M. Widom, Crystalline Ground States of an Entropically Stabilized Quasicrystal Model, *Phys. Rev. B* 64 (2001) 224201–224204.
- [24] D. Levine und P. J. Steinhardt, Quasicrystals: A New Class of Ordered Structures, *Phys. Rev. Lett.* 53 (1984) 2477–2480.
- [25] L. S. Levitov, Local Rules for Quasicrystals, Commun. Math. Phys. 119 (1988) 627–666.

- [26] N. Metropolis, A. Rosenbluth, M. Rosenbluth, A. Teller und E. Teller, Equation of State Calculations by Fast Computing Machines, *J. Chem. Phys.* 21 (1953) 1087–1092.
- [27] M. Mihalkovič, I. Al-Lehyani, E. Cockayne, C. L. Henley, N. Moghadam, J. A. Moriarty, Y. Wang und M. Widom, Total-Energy-Based Prediction of a Quasicrystal Structure, *Phys. Rev. B* 65 (2002) 104205.
- [28] R. Penrose, The Role of Aesthetics in Pure and Applied Mathematical Research, Bull. Inst. Math. and its Appl. 10 (1974) 266–271.
- [29] J. Roth, The Fluid-Solid Transition of Dzugutov's Potential, Eur. Phys. J. B 14 (2000) 449–458.
- [30] J. P. Serre, Linear Represention of Finite Groups, Springer-Verlag, (1977).
- [31] D. Shechtman, I. Blech, D. Gratias und J. W. Cahn, Metallic Phase with Long-Range Orientational Order and No Translational Symmetry, *Phys. Rev. Lett.* 53 (1984) 1951–1953.
- [32] J. E. S. Socolar, T. C. Lubensky und P. J. Steinhardt, Phonons, Phasons, and Dislocations in Quasicrystals., *Phys. Rev. B* 34 (1986) 3345–3360.
- [33] J. Stadler, R. Mikulla und H.-R. Trebin, IMD: A Software Package for Molecular Dynamics Studies on Parallel Computers, *Int. J. Mod. Phys. C* 8 (1997) 1131–1140.
- [34] P. J. Steinhardt und S. Ostlund, The Physics of Quasicrystals, World Scientific, Singapore, (1987).
- [35] K. J. Strandburg, L.-H. Tang und M. V. Jarić, Phason Elasticity in Entropic Quasicrystals, *Phys. Rev. Lett.* 63 (1989) 314–317.
- [36] L.-H. Tang, Random-Tiling Quasicrystal in Three Dimensions, *Phys. Rev. Lett.* 64 (1990) 2390–2393.
- [37] L. H. Tang und M. V. Jarić, Equilibrium Quasicrystal Phase of a Penrose Tiling Model, *Phys. Rev. B* 41 (1990) 4524.
- [38] H.-R. Trebin, R. Mikulla und J. Roth, Motion of Dislocations in Two-Dimensional Decagonal Quasicrystals, J. Non-Cryst. Solids 153-154 (1993) 272–275.

- [39] M. Widom, K. J. Strandburg und R. H. Swendsen, Quasicrystal Equilibrium State, *Phys. Rev. Lett.* 58 (1987) 706–709.
- [40] W.-J. Zhu und C. L. Henley, Phonon-Phason Coupling in Icosahedral Quasicrystals, *Europhys. Lett.* 46 (1999) 748–754.

Lebenslauf

Ulrich Koschella geboren am 18. Juni 1973 in Gaildorf

Eltern:	Horst Helmut Koschella und
	Hildegard Maria geb. Hannappel
1980 - 1984	Besuch der Grundschule in Gaildorf
1984 - 1993	Besuch des Schenk-von-Limpurg-Gymnasiums
	Gaildorf
	Abschluss: Allgemeine Hochschulreife
1993 - 1994	Zivildienst beim Deutschen Roten Kreuz im
	Rettungsdienst mit Ausbildung zum
	Rettungssanitäter
1994 - 2001	Studium an der Universität Stuttgart im
	Studiengang Physik (Diplom)
	Abschluss: Diplom
seit April 2001	Promotion bei Prof. Dr. HR. Trebin
	Institut für Theoretische und Angewandte Physik
	der Universität Stuttgart

Danksagung

Ich möchte mich an dieser Stelle bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Herrn Prof. Dr. Hans-Rainer Trebin danke ich für die freundliche Aufnahme am Institut für Theoretische und Angewandte Physik sowie für die interessante, herausfordernde Aufgabenstellung und die Unterstützung bei ihrer Bearbeitung.

Herrn Prof. Dr. Hans Herrmann danke ich für die Übernahme des Mitberichts.

Dr. Johannes Roth danke ich für die hervorragende Zusammenarbeit bei der Computeradministration und der Entlastung in der "heißen Phase". Von seinem unheimlich breiten Wissen und seiner Literaturkenntnis in der Physik insgesamt und bei Quasikristallen im Speziellen konnte ich oft profitieren.

Dr. Fanz Gähler danke ich für die Beantwortung zahlreicher Fragen, insbesondere zu mathematischen Aspekten wie Hypergittern und Tilings.

Mit Dr. Marek Mihalkovič von der skowakischen Akademie der Wissenschaften durfte ich mehrfach intensiv zusammenarbeiten. Von ihm lernte ich viel über Quasikristalle, Methodik und Spaß an der Wissenschaft.

Meinem ehemaligen Kollegen Dr. Christoph Rudhart danke ich für zahlreiche Diskussionen über die Physik und andere Dinge, ob am Institut oder bei einem Feierabendbier. Bei unseren gemeinsamen Konferenzbesuchen haben wir auch abseits des Programms viel erlebt.

Dr. Franz Gähler, Dr. Johannes Roth, Tobias Koch und meiner Schwester Anne-Gunde danke ich für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

Bei den Sekretärinnen und allen Kollegen bedanke ich mich für die hervorragende Arbeitsathmosphäre am Institut.

Meinen Schwestern Marie und Anne-Gunde und meinen Freunden danke ich für die Aufmunterung und Ablenkung und viele schöne Erlebnisse.

Mein ganz besonderer Dank gilt meinen Eltern. Sie haben mir meine Ausbildung ermöglicht und bis zum Schluss immer mitgezittert. Diese Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft im Rahmen des Schwerpunktprogramms 1031 ("Quasikristalle: Struktur und physikalische Eigenschaften") finanziell gefördert.