

Quantenpunkte im Magnetfeld

Dichtefunktional-Theorie und Exakte Diagonalisierung



DISSERTATION

zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

der Naturwissenschaftlichen Fakultät II – Physik
der Universität Regensburg
vorgelegt

von

Andreas Wensauer
aus Schwandorf

Regensburg, 2003



Promotionsgesuch eingereicht am 12. Februar 2003
Die Arbeit wurde angeleitet von Prof. Dr. U. Rößler

Prüfungsausschuß:

Prof. Dr. C. Strunk	Vorsitzender
Prof. Dr. U. Rößler	1. Gutachter
Prof. Dr. A. Schäfer	2. Gutachter
Prof. Dr. U. Krey	Weiterer Prüfer

Tag des Kolloquiums: 23. April 2003

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	3
Einführung: Vielteilchen-Theorie und Quantenpunkte	7
1. Modell des N-Elektronen-Quantenpunkts	15
1.1 Das Einteilchen-System	15
1.1.1 Der Hamilton-Operator des harmonischen Oszillators im Magnetfeld	16
1.1.2 Die algebraische Lösung des Eigenwertproblems	16
1.1.3 Lösung der partiellen Differentialgleichung	18
1.1.4 Symmetrien des Einteilchen-Systems	20
1.2 Das Vielteilchen-System	20
1.2.1 Symmetrien des Vielteilchen-Systems	22
1.2.2 Abbildung auf das magnetfeldfreie System und Zeitumkehrsymmetrie	25
1.3 Dichten und Stromdichten	26
2. Grundlagen der Dichtefunktional-Theorie	29
2.1 Dichtefunktional-Theorie für spin-unpolarisierte Systeme	30
2.1.1 Hohenberg-Kohn-Theorem	30
2.1.2 Kohn-Sham-Gleichungen	32
2.1.3 Entartete Kohn-Sham-Grundzustände und die v -Repräsentabilität	34
2.2 Spin- und Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie	34
2.2.1 Hohenberg-Kohn-Theorem	35
2.2.2 Kohn-Sham-Formalismus	36
2.2.3 Eichinvarianz	38
2.3 Lokale Dichtenäherungen	39
2.4 Austausch-Korrelation homogener zweidimensionaler Systeme	40
2.4.1 Austausch-Korrelations-Energiedichten in lokaler Spin-Dichtenäherung	40
2.4.2 Korrekturen durch Ströme bzw. Vortizität	44
2.5 Kohn-Sham-Formalismus für Quantenpunkte	48

3. Anwendung der Dichtefunktional-Theorie: Stabilität des $\nu = 2$-Droplets	51
3.1 Modell	53
3.2 Mean-Field-Rechnungen	59
3.3 Hartree-Fock-Rechnungen	60
3.3.1 Hartree-Fock-Rechnungen in den zwei niedrigsten Landau-Niveaus	61
3.4 Ergebnisse der Spin-Dichtefunktional-Theorie-Rechnungen	63
3.5 Experimentelle Ergebnisse	66
3.6 Diskussion	68
4. Exakte Diagonalisierung für Quantenpunkte	71
4.1 Der Gesamtspin als gute Quantenzahl	72
4.2 Exakte Diagonalisierung in beliebigen Magnetfeldern	73
4.2.1 Ergebnisse	74
4.3 Schwerpunktbewegung als gute Quantenzahl	77
4.4 Schwerpunktbewegung und Gesamtspin als gute Quantenzahlen	80
4.5 Exakte Diagonalisierung in hohen Magnetfeldern	81
4.5.1 Ergebnisse	83
4.6 Grenzen der Exakten Diagonalisierung	83
5. Methoden zur Extraktion von Austausch-Korrelations-Energiedichten	87
5.1 Voraussetzungen	88
5.2 Methode	90
5.2.1 Exakte Austausch-Korrelations-Potentiale	90
5.2.2 Austausch-Korrelations-Energiedichten in lokaler Dichtenäherung	92
5.3 Klassifizierung der Systeme	98
5.4 Das Zweielektronen-System	98
5.4.1 Das unpolarisierte Zweielektronen-System	98
5.4.2 Das vollständig polarisierte Zweielektronen-System	103
6. Extrahierte Austausch-Korrelations-Energiedichten	107
6.1 Systeme ohne paramagnetische Stromdichte	107
6.1.1 Unpolarisierte Systeme	107
6.1.2 Vollständig polarisierte Systeme	112
6.1.3 Teilweise polarisierte Systeme	117
6.2 Systeme mit paramagnetischer Stromdichte	119
6.2.1 Vollständig polarisierte Systeme: $\nu = 1$ -Droplets	121
6.2.2 Unpolarisierte Systeme: $\nu = 2$ -Droplets	126
Zusammenfassung und Ausblick	133
A. Coulomb-Matrixelemente	137
A.1 Notation und Theoreme	137
A.2 Die Fourier-Transformierte des Coulomb-Potentials in zwei Dimensionen	138
A.3 Berechnung der Matrixelemente	138
A.4 Numerisch stabile Implementierung der Coulomb-Matrixelemente . . .	142

B. Hartree-Potential	145
C. Dichten von Multiplettzuständen	149
D. Eindeutigkeit der Austausch-Korrelations-Potentiale	151
Abbildungsverzeichnis	153
Literaturverzeichnis	155
Danksagung	165

Nichts ist praktischer als eine gute Theorie.

— Immanuel Kant

EINFÜHRUNG

Vielteilchen-Theorie und Quantenpunkte

Die komplizierte mathematische Struktur von wechselwirkenden Vielfermionen-Systemen, bedingt durch die vom Pauli-Prinzip geforderte Antisymmetrisierung der Wellenfunktion sowie durch Austausch- und Korrelationseffekte, ist eine bedeutende Herausforderung der theoretischen Physik. Seit den Anfängen der Quantenmechanik wurden verschiedene Methoden und Näherungen wie Mean-field-Theorien, Quanten-Monte-Carlo-Verfahren, Greensche Funktionen oder Exakte Diagonalisierungs-Verfahren entwickelt, um das breite Spektrum an Effekten der Vielteilchen-Physik zu beschreiben. Als Modellsysteme stehen Quantenpunkte* und als Vielteilchen-Methoden die Dichtefunktional-Theorie und die Exakte Diagonalisierung im Mittelpunkt der vorliegenden Arbeit.

Die Grundlagen zur Realisierung der betrachteten Quantenpunkte liefert die Nanotechnologie. Sie erlaubt die kontrollierte Herstellung von atomar genauen Strukturen in Halbleitern und somit eine Einschränkung der Bewegung der Ladungsträger in einer, zwei oder drei Raumrichtung(en) auf Bereiche in der Größenordnung von wenigen bis zu einigen hundert Nanometern. In diesem Regime treten quantenmechanische Effekte auf, die aus dem Studium der von der klassischen Physik dominierten Mikrostrukturen weitgehend unbekannt sind. Erste Anwendungen, die auf Nanostrukturen beruhen, kristallisieren sich bereits heraus. Speziell auf der Basis von Quantenpunkten wurden Halbleiterlaser mit hoher Effizienz (Fafard et al. (1996³⁷)), sowie Single-electron-Transistoren (Kastner (1997⁷⁷)) entwickelt. Ferner sind Quantendots im Gespräch zur Kodierung von Qubits von Quantencomputern (Divincenzo et al. (2000³²)) und in Kombination mit photonischen Kristallen als Devices zur Erzeugung einzelner Photonen (Yuan et al. (2001¹⁸²), Santori et al. (2002¹⁴⁴)). Der letzte Aspekt ist ebenfalls interessant in Zusammenhang mit der Realisierung von Quantencomputern: Wie Knill et al. (2001⁷⁹) zeigen, sind dazu einzelne Photonen und lineare optische Elemente ausreichend.

*Die Bezeichnungen „Quantendots“ und „Quantenpunkte“ werden im folgenden synonym gebraucht.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit werden wir uns hauptsächlich mit Quantendots auf der Basis von Halbleiter-Schichtstrukturen (Heterostrukturen) beschäftigen. Diese Systeme beruhen auf dem versetzungsfreien Aufwachsen von wenigen Monolagen dicken Schichten aus unterschiedlichen Materialien. Zwei wichtige Verfahren, die diese Voraussetzung erfüllen, sind die Molekularstrahlepitaxie (MBE) und die metallorganische chemische Gasphasenepitaxie (MOCVD). Um Verspannungen während des Wachstumsprozesses zu vermeiden, werden Verbindungen mit nahezu identischen Gitterkonstanten wie GaAs und AlAs verwendet.[†] Da dem Vergleich von Theorie und Experiment in Kapitel 3 eine GaAs/Al_xGa_{1-x}As-Schichtstruktur zugrunde liegt, wollen wir uns im folgenden auf diese Materialkombination konzentrieren. Die freien Ladungsträger sind Elektronen und werden durch Si-Donatoratome eingebracht, die das dreiwertige Metall in der Verbindung ersetzen.[‡] Da die Elektronen von den ionisierten Störstellen räumlich getrennt sind, erreicht die Beweglichkeit der Ladungsträger Werte bis 1000 m²/Vs.

Abbildung E.1 zeigt den Schichtaufbau (a) und das Bandkantenprofil (b) einer typischen GaAs/Al_xGa_{1-x}As-Heterostruktur. Da das Mischungsverhältnis x (20 % – 30 %) die Bandlücke von Al_xGa_{1-x}As bestimmt, treten infolge der Schichtstruktur Unstetigkeiten der Bandkanten in z -Richtung auf. Dieser Effekt wird zusammen mit der Wechselwirkung der Elektronen untereinander und mit den an festen Gitterplätzen sitzenden Donatorionen selbstkonsistent in Form des effektiven Potentials $V(z)$ berücksichtigt. Durch $V(z)$ ist die Bewegung der Elektronen in z -Richtung stark eingeschränkt. Es entsteht ein Quantenfilm, der bei tiefen Temperaturen (einige Kelvin) zum zweidimensionalen Elektronengas wird. In diesem Zustand ist nur das unterste Subband des durch $V(z)$ definierten Systems besetzt, während die Translationssymmetrie in der Ebene senkrecht zur Wachstumsrichtung erhalten bleibt. Da die Ausdehnung der Wellenfunktion $\zeta_0(z)$ in z -Richtung auf einige wenige Nanometer beschränkt ist, kann die Elektronendichte in z -Richtung näherungsweise durch eine δ -Funktion approximiert werden.

Durch zusätzliche laterale Potentiale läßt sich eine weitere Einschränkung der Bewegung der Elektronen realisieren. So ist es möglich, mit Hilfe von negativ geladenen Metall-Gates oder durch Ätzen entsprechender Strukturen neue Systeme zu definieren wie quasi-eindimensionale Quantendrähte, Quantenringe oder auch nulldimensionale Quantenpunkte.[§]

Die wesentliche Eigenschaft von Quantenpunkten ist ihre Nulldimensionalität, d.h. es existiert ein dreidimensionales Einschlußpotential, wie es auch bei Atomen vorliegt. Im Fall von Quantenpunkten übernimmt statt des Kernpotentials ein vergleichsweise schwaches elektrostatisches Potential die Rolle des Confinements. Nachdem in drei

[†]Halbleitermaterialien mit unterschiedlichen Gitterkonstanten (z.B. GaAs und InAs) führen zu einer alternativen Herstellungsmethode von Quantendots, die auf selbstorganisiertem Wachstum (Stranski & Krastanov, 1937¹⁵², Goldstein et al., 1985⁴⁸, Marzin et al., 1994¹⁰⁴) beruht. Da die Gitterkonstante von InAs größer ist als die von GaAs, entstehen beim Aufwachsen von InAs auf einer GaAs-Schicht Verspannungen, die die Bildung von Quantenpunkten in Form von InAs-Inseln begünstigen.

[‡]Alternativ können auch freie Ladungsträger durch optische Anregung erzeugt werden. Allerdings sind diese exzitonischen Systeme nicht Gegenstand dieser Arbeit.

[§]Quantendrähte oder Quantenpunkte lassen sich auch durch Cleaved-edge-overgrowth (Pfeiffer et al. (1990¹²⁷), Wegscheider et al. (1996¹⁶⁷)) herstellen.

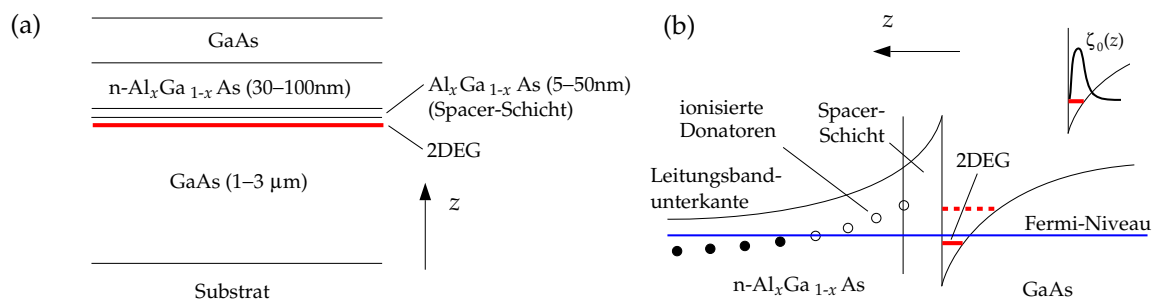


ABBILDUNG E.1: Schematische Darstellung einer GaAs/Al_xGa_{1-x}As-Heterostruktur: (a) Schichtstruktur mit Lage des 2DEGs. (b) Bandkantenverlauf mit ionisierten Donatoren (o) oberhalb der Fermi-Energie. Das System befindet sich im elektrischen Quantenlimes, wenn nur das unterste Subbandkontinuum mit der Enveloppe $\zeta_0(z)$ besetzt ist. Entnommen aus Steffens (1999¹⁴⁸).

unabhängigen Arbeiten von Meurer et al. (1992¹¹⁰), Ashoori et al. (1992⁶) und McEuen et al. (1992¹⁰⁷) eine entscheidende atomare Eigenschaft von Quantenpunkten, das sukzessive Laden von einzelnen Elektronen und damit das für nulldimensionale Strukturen typische diskrete Niveausystem, demonstriert wurde, etablierte Kastner (1993⁷⁶) für Quantenpunkte die Bezeichnung „künstliche Atome“. Darüber hinaus konnten in Quantenpunkten mit axialsymmetrischem Einschlußpotential Schaleneffekte und die Hundsche Regel im Energiespektrum nachgewiesen werden.¹⁵⁴

Neben all den diskutierten Analogien existieren auch wesentliche Unterschiede zwischen natürlichen und künstlichen Atomen. So liegt in natürlichen Atomen ein (dreidimensionales) Coulomb-Potential vor, das im Zentrum divergiert und dessen Stärke durch die Protonenzahl im Kern definiert ist. In den hier betrachteten Quantenpunkten setzt sich das Confinement-Potential zusammen aus einem starken Potential in Wachstumsrichtung der Heterostruktur und einem vergleichsweise schwachen lateralen Anteil, was die Behandlung als zweidimensionales System mit zusätzlichem Confinement in der Ebene rechtfertigt. Das laterale Potential ist in guter Näherung im Minimum parabolisch und seine Form kann durch die Strukturierung definiert werden. Das im Vergleich zum Kernpotential schwache Confinement-Potential eines Quantenpunkts[¶] hat weitere wichtige Konsequenzen. Zusammen mit der kleinen effektiven Masse der Elektronen im Leitungsband zeigt sich, daß die drei charakteristischen Längen des Systems, die magnetische Länge, der Bohrsche Radius und die Bindungslänge des Potentials, in der gleichen Größenordnung liegen. Somit werden Niveaufkreuzungen, die in natürlichen Atomen erst bei Magnetfeldern von einigen tausend Tesla auftreten, bei Quantenpunkten bereits für $B < 10\text{T}$ erwartet. Insbesondere das Zusammenspiel von Coulomb-Wechselwirkung und Magnetfeld weist ein reiches Spektrum an interessanten Phänomenen auf, die das Studium von Vielteilchen-Effekten in Quantenpunkten im Magnetfeld motivieren.

Ein grundlegendes Experiment zur Untersuchung der elektronischen Eigenschaften von Quantendots sind Coulomb-Blockade-Spektren. Tarucha et al. (1996¹⁵⁴) führten entsprechende Messungen an vertikalen Quantendots durch. Wie in Abbildung

[¶]Die charakteristische Bindungsenergie liegt in der Größenordnung von einigen meV.

E.2 (b) gezeigt, ist der Dot durch das laterale Confinement definiert, das durch das Herausätzen einer Säule aus dem 2DEG entsteht. Die Säule selbst ist von einer ringförmigen Gate-Elektrode umgeben, die die Änderung des chemischen Potentials des Quantenpunkts relativ zu den Niveaus von Source- und Drain-Kontakten erlaubt. Ein Coulomb-Blockade-Spektrum wie in Abbildung E.2 (a) entsteht, indem die Stärke des Tunnelstroms durch das Device als Funktion der Gate-Spannung gemessen wird. Der Strom tritt dabei genau dann auf, wenn das chemische Potential und die Niveaus von Source und Drain gleich sind^{||} und Elektronen resonant durch die Barrieren tunneln können. Bei der Interpretation der Additionsenergien,** d.h. dem Abstand zwischen zwei Strompeaks, ist zu berücksichtigen, daß ein wechselwirkendes System von wenigen Teilchen vorliegt. Zusätzlich zur Energiedifferenz zum nächsten unbesetzten Einteilchen-Niveau (die im Falle einer Entartung auch Null sein kann) muß bei der Addition eines weiteren Elektrons auch die Energie der Coulomb-Abstoßung aufgebracht werden. Somit werden die Elektronen einzeln in den Quantenpunkt geladen, und die Strompeaks reflektieren das diskrete Spektrum eines nulldimensionalen Systems.

Die Peakpositionen des Coulomb-Blockade-Spektrums als Funktion des Magnetfelds sind in Abbildung E.2(c) dargestellt. In den Kurven manifestieren sich die Niveaure Kreuzungen des Einteilchen-Spektrums, die allerdings durch klassische Coulomb-Abstoßung sowie Austausch-Korrelations-Effekte modifiziert werden. Während Miller (1998¹¹⁴) keine Spineffekte im Magnetfeld nachweisen kann, deuten die Ergebnisse von Tarucha zumindest indirekt auf Spin-Polarisation im Magnetfeld hin, die im Sinne einer verallgemeinerten Hundschen Regel beschrieben werden kann.¹⁴⁸

In neueren Coulomb-Blockade-Experimenten ist es hingegen auch möglich, Spineffekte direkt zu beobachten. Zusätzlich zur Peakposition kann der Informationsgehalt der Peakamplituden ausgewertet werden. Ciorga et al., 2001²⁵ bzw. 2002²⁶ zeigen, daß bei Coulomb-Blockade-Experimenten im Magnetfeld spin-polarisierte Injektion/Detektion stattfindet, die sich auf die Amplituden auswirkt. Die entsprechenden Strukturen im Amplitudenspektrum weisen auf Grundzustandsübergänge hin, die im Spektrum der Peakpositionen nicht sichtbar sind. Ein Ziel im Rahmen der vorliegenden Arbeit ist die theoretische Beschreibung der damit verbundenen Phänomene. Darüber hinaus ist diese Problemstellung eine hervorragende Gelegenheit, die Möglichkeiten der Dichtefunktional-Theorie zu demonstrieren.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konzentrieren wir uns auf Quantenpunkte als ideale Modellsysteme zum Studium des Wechselspiels von Coulomb-Wechselwirkung und Magnetfeld. Die Enveloppenfunktions-Näherung⁹⁷ liefert den mathematischen Rahmen für die Beschreibung von strukturierten Halbleitern. Ihre Anwendung auf Quantenpunkte, die durch ein 2DEG mit einem zusätzlichen lateralen Confinement-Potential definiert sind, zeigt, daß sich Quantendots in guter Näherung als zweidimensionale Systeme behandeln lassen. Voraussetzung sind allerdings tiefe Temperaturen, so daß nur das unterste Subband besetzt ist. Für die effektive Masse und den effektiven

^{||}Bei dieser Art von Experiment ist die Spannungsdifferenz zwischen Source und Drain nur infinitesimal, und die Elektronen tunneln nur durch Grundzustände. Wird eine endliche Spannung angelegt, so werden auch angeregte Zustände berücksichtigt (vgl. z.B. Referenz⁸⁸).

**Die Additionsenergien ähneln der von natürlichen Atomen bekannten Elektronenaffinität.⁴

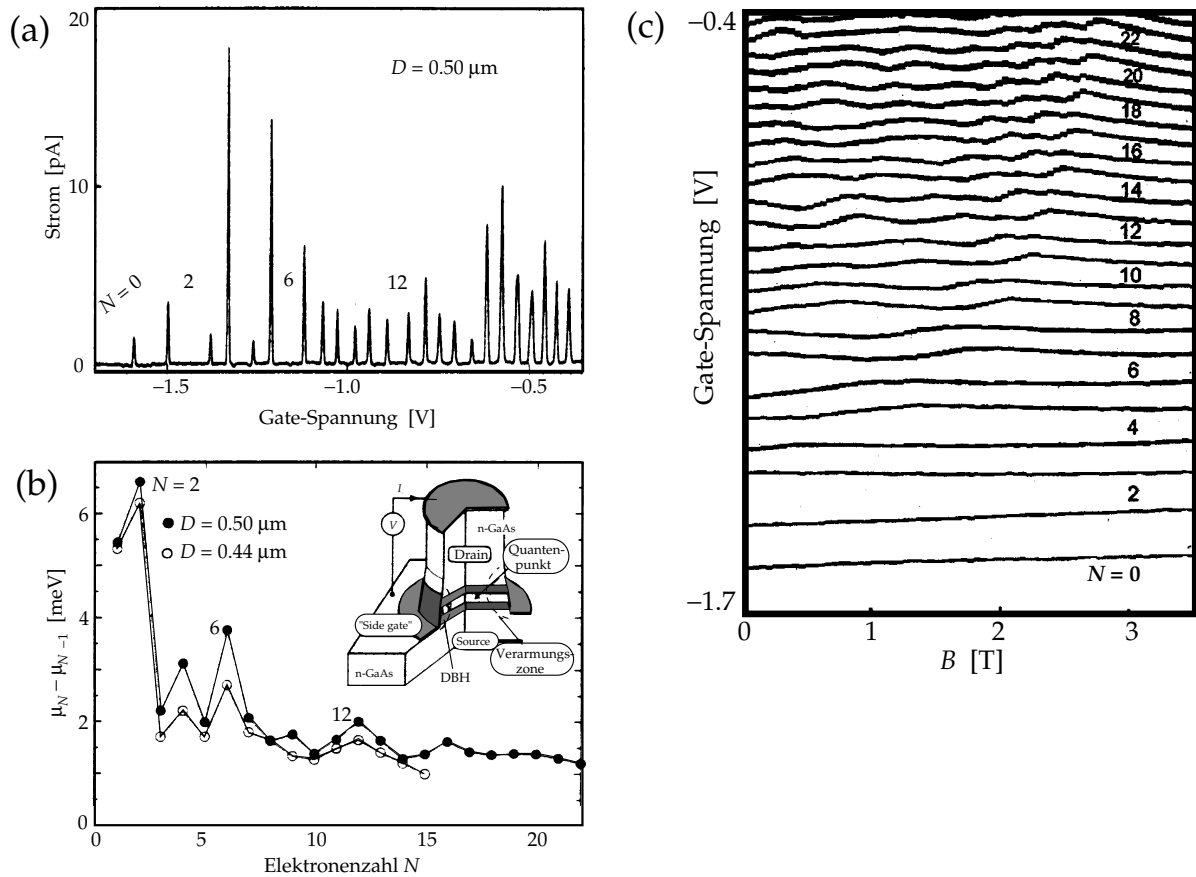


ABBILDUNG E.2: (a) Oszillationen in der Strom-Gate-Spannungs-Charakteristik bei $B = 0 \text{ T}$ in einem Quantenpunkt mit einem geometrischen Durchmesser $D = 0.5 \mu\text{m}$. Die Gate-Spannung an den Peakpositionen entspricht der Additionsenergie μ_N zum Laden eines weiteren Elektrons zu einem N -Elektronen-System. (b) Differenzen der Additionsenergien $\mu_N - \mu_{N-1}$ in Abhängigkeit der Elektronenzahl N für unterschiedliche Durchmesser mit einer schematischen Zeichnung der untersuchten Struktur. Charakteristisch sind die ausgeprägten Peakabstände nach dem Laden von 2, 6, 12 Elektronen, die jeweils einem System mit abgeschlossenen Schalen entsprechen. Für halbgefüllte Schalen bei $N = 4$ und 9 treten ebenfalls erhöhte Additionsenergien auf, da auch die durch Austauscheffekte induzierte Spinausrichtung zu einer energetisch günstigen Konfiguration führt. (c) Gate-Spannungen, d.h. Peakpositionen, als Funktion des Magnetfelds. (Nach Tarucha et al., 1996¹⁵⁴.)

g -Faktor gelten die aus der $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Theorie^{74,75} bekannten Werte (GaAs: $m^* = 0.0670m_e$, $g = -0.44$). Damit ist das Modellsystem, das allen Rechnungen in der vorliegenden Arbeit zugrunde liegt, zweidimensional, umfaßt N wechselwirkende Elektronen in einem zweidimensionalen harmonischen Potential sowie ein homogenes Magnetfeld senkrecht zur Ebene.

Für die Untersuchung der elektronischen Eigenschaften verwenden wir zwei von der Konzeption her komplementäre Methoden, nämlich die Dichtefunktional-Theorie und die Exakte Diagonalisierung.

Die Exakte Diagonalisierung ist wohl eines der direktesten, aber auch rechenintensivsten Verfahren zur Bestimmung der Eigenzustände des Systems. Sie muß deshalb auf wenige Elektronen begrenzt bleiben, liefert dafür aber in Form der Vielteilchen-Wellenfunktion ein Maximum an Informationen mit hoher Genauigkeit.

Dagegen beschränkt sich die Dichtefunktional-Theorie auf die Kenntnis der Grundzustandsdichten^{††} und Energien. Der Wermutstropfen, der dem Verfahren Grenzen setzt, ist die Unkenntnis des exakten Austausch-Korrelations-Funktional. Davon sind insbesondere zwei Aspekte betroffen: Zum einen gibt es für zweidimensionale Systeme keine Arbeiten zu Gradientenkorrekturen, wie sie für dreidimensionale Systeme state of the art sind. Andererseits beruht die für die lokale Dichtenäherung am häufigsten verwendete Austausch-Korrelations-Energiedichte auf einer Parametrisierung, die zwischen unpolarisierten und vollständig polarisierten Systemen interpoliert (Tanatar & Ceperley (1989¹⁵³)). In neueren Arbeiten zu Austausch-Korrelations-Energiedichten in zwei Dimensionen (Seidl (2001¹⁴⁵), Attaccalite et al. (2002⁷)) wird dem zweiten Kritikpunkt Rechnung getragen.

In der vorliegenden Arbeit wollen wir Austausch-Korrelations-Energiedichten aus Elektronensystemen in Quantenpunkten gewinnen, deren Grundzustandseigenschaften aus Exakten Diagonalisierungen bekannt sind. Dazu werden die Kohn-Sham-Gleichungen invertiert und die exakten Austausch-Korrelations-Potentiale berechnet. Im Rahmen der lokalen Dichtenäherung ist es in einem weiteren Schritt möglich, Austausch-Korrelations-Energiedichten als Funktion von Grundzustandsspindichten und paramagnetischer Stromdichte bzw. Vortizität zu extrahieren. Speziell die Berücksichtigung der Vortizität, also der stromabhängigen Korrektur der Austausch-Korrelations-Energiedichten ist ein Aspekt, der in den Arbeiten von Seidl (2001¹⁴⁵) und Attaccalite et al. (2002⁷) nicht betrachtet wurde. Somit wollen wir mit unseren Rechnungen einen Beitrag leisten zum Verständnis der in die lokale Dichtenäherung eingehenden zentralen Größe, der Austausch-Korrelations-Energiedichte als Funktion von Dichte, Polarisation und Stromdichte (bzw. Vortizität).

^{††}In dieser Arbeit verwenden wir die Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie¹⁶⁴, die auf Grundzustandsspindichten und paramagnetischer Stromdichte beruht.

Aufbau der vorliegenden Arbeit

Die Arbeit ist in sechs Kapitel gegliedert und wird von einer Zusammenfassung abgerundet:

- KAPITEL 1 gibt eine Übersicht über verschiedene Darstellungen des Hamilton-Operators von N wechselwirkenden Elektronen in einem Quantenpunkt und die Symmetrien des Systems.
- In KAPITEL 2 sind die Grundlagen der Dichtefunktional-Theorie, das Hohenberg-Kohn-Theorem und die Kohn-Sham-Gleichungen, zusammengefaßt. Insbesondere diskutieren wir die Anwendbarkeit dieser Konzepte auf Quantendots.
- Das KAPITEL 3 ist durch zwei wesentliche Aspekte motiviert: Einerseits ist es eine Demonstration des Potentials der Dichtefunktional-Theorie, die es im Gegensatz zu anderen effektiven Einteilchen-Methoden erlaubt, die Amplitudenmodulation in Coulomb-Blockade-Experimenten an Quantendots zu erklären. Andererseits offenbart es auch die zentrale Schwäche der Dichtefunktional-Theorie, die Unkenntnis des exakten Austausch-Korrelations-Funktional. Damit gibt KAPITEL 3 Anlaß zu einer systematischen Untersuchung der Austausch-Korrelations-Potentiale und -Energiedichten, ausgehend von Grundzustandswellenfunktionen aus der Exakten Diagonalisierung.
- Die Exakte Diagonalisierung wird in KAPITEL 4 behandelt. Wir stellen Ansätze zur Verbesserung der Methode vor, indem wir den Gesamtspin und die Schwerpunktbewegung als gute Quantenzahlen nutzen, präsentieren Ergebnisse für Grundzustände sowie angeregte Zustände und zeigen die Grenzen des Verfahrens auf.
- KAPITEL 5 widmet sich schließlich den von uns verwendeten numerischen Verfahren zur Berechnung von Austausch-Korrelations-Potentialen und -Energiedichten. Zusätzlich stellen wir zwei Spezialfälle vor, die analytisch behandelt werden können.
- KAPITEL 6 faßt die numerischen Ergebnisse für Austausch-Korrelations-Potentiale und -Energiedichten von verschiedenen Systemen zusammen, die wir nach Polarisation und Stromdichten klassifizieren. Wir diskutieren die Resultate vor dem Hintergrund der lokalen Dichtenäherung und vergleichen unsere Austausch-Korrelations-Energiedichten mit denen aus der Literatur.

KAPITEL 1

Modell des N -Elektronen-Quantenpunkts

In diesem Kapitel stellen wir das Modell des zweidimensionalen N -Elektronen-Quantenpunkts vor. Ausgehend von den Eigenschaften des Einteilchen-Systems werden die Symmetrien des wechselwirkenden Systems erklärt sowie ihre Darstellungen in zweiter Quantisierung berechnet. Damit wird insbesondere die Grundlage für die Ausnutzung der Erhaltungsgrößen in der Exakten Diagonalisierung (ED) vorbereitet. Ein weiterer Aspekt ist die Einführung der Notation.

1.1 Das Einteilchen-System

Wir betrachten ein Elektron mit der effektiven Masse m^* , der Ladung $-e$ und dem gyromagnetischen Verhältnis g , das sich in der xy -Ebene in dem isotropen, harmonischen Potential $V(\mathbf{r}) = m^* \omega_0^2 \mathbf{r}^2 / 2$ bewegt. Außerdem sei in z -Richtung ein konstantes homogenes Magnetfeld $\mathbf{B} = (0, 0, B)$ angelegt, das durch das Vektorpotential $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ beschrieben wird. Dann lautet der zugehörige Hamilton-Operator

$$\hat{H}_0 = \frac{1}{2m^*} (\mathbf{p} + e\mathbf{A}(\mathbf{r}))^2 + \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 \mathbf{r}^2 - g \mu_B B \hat{s}_z / \hbar \quad (1.1)$$

Der orbitale Anteil von (1.1) wird im folgenden mit $\hat{h}_0$ bezeichnet,

$$\hat{h}_Z = -g \mu_B B \hat{s}_z / \hbar = -g \mu_B B \hat{\sigma}_z / 2 \quad (1.2)$$

ist die Zeeman-Energie, $\mu_B = e\hbar/(2m_e)$ das Bohrsche Magneton, und $s_z = \pm\hbar/2$ bzw. $\sigma = \pm 1$ sind die Eigenwerte der Spinoperatoren $\hat{s}_z$ bzw. $\hat{\sigma}_z$.

Soweit nicht anders angegeben, werden allen Rechnungen dieser Arbeit GaAs-Parameter zugrunde gelegt: $m^* = 0.067m_e$, $g = -0.44$ (das entspricht einer Zeeman-Energie $E_z/B = -g\mu_B = 0.0254\text{meV/T}$), $\varepsilon = 12.4$, $a_0 = 9.7937\text{nm}$ und $\text{Ry} = 5.9286\text{meV}$. Aus Gründen der Vollständigkeit sind auch die Dielektrizitätskonstante ε , der effektive Bohrsche Radius a_0 und die effektive Rydberg-Energie Ry mit angeführt, da diese für das wechselwirkende System relevant sind (vgl. Abschnitt 1.2).

1.1.1 Der Hamilton-Operator des harmonischen Oszillators im Magnetfeld

Unter Verwendung der symmetrischen Eichung für das Vektorpotential $A(\mathbf{r}) = B/2(-y, x, 0)$ lautet der orbitale Anteil des Hamilton-Operators (1.1)

$$\hat{h}_0 = \frac{1}{2m^*} (\mathbf{p} + eA(\mathbf{r}))^2 + \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 r^2 \quad (1.3)$$

oder

$$\hat{h}_0 = \frac{1}{2m^*} (p_x^2 + p_y^2) + \frac{1}{2} m^* \omega_h^2 (x^2 + y^2) + \frac{\omega_c}{2} (xp_y - yp_x) \quad (1.4)$$

oder

$$\hat{h}_0 = \frac{1}{2m^*} \mathbf{p}^2 + \frac{1}{2} m^* \omega_h^2 r^2 + \frac{\hbar \omega_c}{2i} \frac{\partial}{\partial \varphi}. \quad (1.5)$$

Dabei liegen die Vektoren $\mathbf{r} = (x, y, 0)$ und $\mathbf{p} = (p_x, p_y, 0)$ in der xy -Ebene. Die z -Komponente des Bahndrehimpulses l_z ist durch $l_z = xp_y - yp_x = \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial \varphi}$ definiert, und $\omega_c = eB/m^*$ bzw. $\omega_h = \sqrt{\omega_0^2 + \omega_c^2/4}$ sind die Zyklotronfrequenz bzw. Hybridfrequenz des Systems.

Die beiden letzten Darstellungen des Hamilton-Operators legen zwei verschiedene Lösungsmethoden für die Schrödinger-Gleichung nahe, die auf Fock (1928⁴⁴) und Darwin (1931³⁰) zurückgehen: Gleichung (1.4) führt zur algebraischen Methode, während ausgehend von (1.5) Eigenfunktionen und Spektrum durch Lösung der partiellen Differentialgleichungen berechnet werden. Es folgt ein kurzer Abriß aller für die vorliegende Arbeit relevanten Ergebnisse.

1.1.2 Die algebraische Lösung des Eigenwertproblems

Zunächst vernachlässigen wir den letzten Term in Gleichung (1.4), d.h. wir nehmen den magnetfeldfreien Fall $B = 0$ an. Dann besteht das System aus zwei unabhängigen harmonischen Oszillatoren in der x - und y -Richtung. Wir definieren die wohlbekannten Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren

$$\begin{aligned} \hat{a}_x^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{x}{l} - \frac{il}{\hbar} p_x \right) & \hat{a}_x &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{x}{l} + \frac{il}{\hbar} p_x \right) \\ \hat{a}_y^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{y}{l} - \frac{il}{\hbar} p_y \right) & \hat{a}_y &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{y}{l} + \frac{il}{\hbar} p_y \right). \end{aligned} \quad (1.6)$$

$l = \sqrt{\hbar/(m^* \omega_h)}$ ist die Oszillatorlänge des Systems. Mit Ausnahme der Kombinationen

$$[\hat{a}_x, \hat{a}_x^\dagger] = [\hat{a}_y, \hat{a}_y^\dagger] = 1 \quad (1.7)$$

sind alle Kommutatoren zwischen Erzeugern und Vernichtern Null.

Mit Hilfe der Rücktransformation von (1.6) läßt sich der Hamilton-Operator (1.4) umformulieren

$$\hat{h}_0 = \hbar \omega_h \left(\hat{a}_x^\dagger \hat{a}_x + \hat{a}_y^\dagger \hat{a}_y + 1 \right) + \frac{\hbar \omega_c}{2i} \left(\hat{a}_y \hat{a}_x^\dagger - \hat{a}_x \hat{a}_y^\dagger \right). \quad (1.8)$$

Im zweiten Schritt eliminieren wir im letzten Term von (1.8) die Kopplung zwischen den beiden Oszillatoren in x - und y -Richtung. Die zugehörige Transformation lautet

$$\begin{aligned}\hat{a}_+^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{a}_x^\dagger + i\hat{a}_y^\dagger) & \hat{a}_+ &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{a}_x - i\hat{a}_y) \\ \hat{a}_-^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{a}_x^\dagger - i\hat{a}_y^\dagger) & \hat{a}_- &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{a}_x + i\hat{a}_y).\end{aligned}\quad (1.9)$$

Unter Berücksichtigung der Kommutatoren (1.7) kann man sich leicht von der Gültigkeit der folgenden Vertauschungsrelationen für die neuen Erzeuger und Vernichter überzeugen

$$[\hat{a}_+, \hat{a}_+^\dagger] = [\hat{a}_-, \hat{a}_-^\dagger] = 1; \quad (1.10)$$

alle anderen Kombinationen liefern Null.

Damit erhalten wir den Hamilton-Operator

$$\hat{h}_0 = \hbar\omega_h (\hat{a}_+^\dagger \hat{a}_+ + \hat{a}_-^\dagger \hat{a}_- + 1) + \frac{\hbar\omega_c}{2} (\hat{a}_+^\dagger \hat{a}_+ - \hat{a}_-^\dagger \hat{a}_-) \quad (1.11)$$

bzw. mit den Zahloperatoren $\hat{n}_+ = \hat{a}_+^\dagger \hat{a}_+$ und $\hat{n}_- = \hat{a}_-^\dagger \hat{a}_-$ und $\omega_\pm = \omega_h \pm \frac{\omega_c}{2}$

$$\hat{h}_0 = \hbar\omega_+ \left(\hat{n}_+ + \frac{1}{2} \right) + \hbar\omega_- \left(\hat{n}_- + \frac{1}{2} \right). \quad (1.12)$$

Wie aus den Gleichungen (1.12) und (1.10) offensichtlich ist, liegen nun zwei unabhängige harmonische Oszillatoren mit den Frequenzen $\omega_\pm$ vor. Analog zum eindimensionalen harmonischen Oszillator läßt sich die Wirkung von $\hat{a}_\pm$ und $\hat{a}_\pm^\dagger$ auf einen Eigenzustand $|n_+, n_- \rangle$ zeigen:

$$\begin{aligned}\hat{a}_+^\dagger |n_+, n_- \rangle &= \sqrt{n_+ + 1} |n_+ + 1, n_- \rangle & \hat{a}_+ |n_+, n_- \rangle &= \sqrt{n_+} |n_+ - 1, n_- \rangle \\ \hat{a}_-^\dagger |n_+, n_- \rangle &= \sqrt{n_- + 1} |n_+, n_- + 1 \rangle & \hat{a}_- |n_+, n_- \rangle &= \sqrt{n_-} |n_+, n_- - 1 \rangle \\ \hat{n}_+ |n_+, n_- \rangle &= n_+ |n_+, n_- \rangle \\ \hat{n}_- |n_+, n_- \rangle &= n_- |n_+, n_- \rangle.\end{aligned}\quad (1.13)$$

Folglich lassen sich alle Zustände aus dem Grundzustand (Vakuumzustand) $|0, 0 \rangle$ konstruieren

$$|n_+, n_- \rangle = \sqrt{\frac{1}{n_+! n_-!}} (\hat{a}_+^\dagger)^{n_+} (\hat{a}_-^\dagger)^{n_-} |0, 0 \rangle. \quad (1.14)$$

Die zugehörigen Eigenenergien lauten

$$\varepsilon_{n_+, n_-} = \hbar\omega_+ \left(n_+ + \frac{1}{2} \right) + \hbar\omega_- \left(n_- + \frac{1}{2} \right). \quad (1.15)$$

Da sich die z -Komponente des Bahndrehimpulses l_z in der Form $l_z = \hbar(\hat{n}_+ - \hat{n}_-)$ darstellen läßt, sind die Eigenzustände $|n_+, n_- \rangle$ von $\hat{h}_0$ auch Drehimpulseigenzustände

mit Eigenwert $\hbar m = \hbar(n_+ - n_-)$. Für große Magnetfelder ($\omega_c/\omega_0 \rightarrow \infty$) konvergieren die Zustände $|0, n_- \rangle$ ($n_- = 0, 1, 2, 3, \dots$) zum niedrigsten Landau-Niveau.

Durch Kombination der linearen Transformationen (1.6) und (1.9) erhalten wir $\hat{a}_+$, $\hat{a}_-$, $\hat{a}_+^\dagger$ und $\hat{a}_-^\dagger$ als Funktion von x , y , p_x und p_y

$$\begin{aligned}\hat{a}_+^\dagger &= \frac{1}{2} \left(\frac{x+iy}{l} - \frac{il}{\hbar} (p_x + ip_y) \right) & \hat{a}_+ &= \frac{1}{2} \left(\frac{x-iy}{l} + \frac{il}{\hbar} (p_x - ip_y) \right) \\ \hat{a}_-^\dagger &= \frac{1}{2} \left(\frac{x-iy}{l} - \frac{il}{\hbar} (p_x - ip_y) \right) & \hat{a}_- &= \frac{1}{2} \left(\frac{x+iy}{l} + \frac{il}{\hbar} (p_x + ip_y) \right)\end{aligned}\quad (1.16)$$

bzw. die zugehörige inverse Transformation

$$\begin{aligned}x &= \frac{l}{2} (\hat{a}_+ + \hat{a}_+^\dagger + \hat{a}_- + \hat{a}_-^\dagger) & p_x &= \frac{\hbar}{2il} (\hat{a}_+ - \hat{a}_+^\dagger + \hat{a}_- - \hat{a}_-^\dagger) \\ y &= \frac{il}{2} (\hat{a}_+ - \hat{a}_+^\dagger - \hat{a}_- + \hat{a}_-^\dagger) & p_y &= \frac{\hbar}{2l} (\hat{a}_+ + \hat{a}_+^\dagger - \hat{a}_- - \hat{a}_-^\dagger).\end{aligned}\quad (1.17)$$

Im folgenden wird die Ortsdarstellung der Eigenfunktionen $|n_+, n_- \rangle$ mit

$$\alpha_{n_+, n_-}(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{r} | n_+, n_- \rangle \quad (1.18)$$

bezeichnet.

1.1.3 Lösung der partiellen Differentialgleichung

Ein alternativer Ansatz für die Schrödinger-Gleichung basiert auf der Lösung der partiellen Differentialgleichung $\hat{h}_0\psi = \varepsilon\psi$ in Zylinderkoordinaten (r, φ)

$$\hat{h}_0 = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} \right) + \frac{1}{2} m^* \omega_h^2 r^2 + \frac{\hbar \omega_c}{2i} \frac{\partial}{\partial \varphi}. \quad (1.19)$$

(Der Laplace-Operator in Zylinderkoordinaten¹⁴ lautet $\Delta = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2}$.) Aufgrund der Axialsymmetrie des Hamilton-Operators können die Wellenfunktionen als Eigenfunktionen des Drehimpulses gewählt werden

$$\psi_{nm}(r, \varphi) = R_{n|m|}(r) e^{im\varphi} \quad (1.20)$$

mit den radialen Quantenzahlen $n = 0, 1, 2, \dots$ und den Drehimpulsquantenzahlen m in z -Richtung. Die Lösungen der radialen Schrödinger-Gleichung sind die Wellenfunktionen^{30,44}

$$R_{n|m|}(r) = \frac{(-1)^n}{l} \sqrt{\frac{n!}{\pi(n+|m|)!}} e^{-r^2/(2l^2)} \left(\frac{r}{l} \right)^{|m|} L_n^{|m|}(r^2/l^2) \quad (1.21)$$

mit den verallgemeinerten Laguerre-Polynomen⁵⁰

$$L_n^\alpha(x) = \sum_{i=0}^n \frac{(-1)^i}{i!} \frac{(n+\alpha)!}{(n-\alpha)!(\alpha+i)!} x^i. \quad (1.22)$$

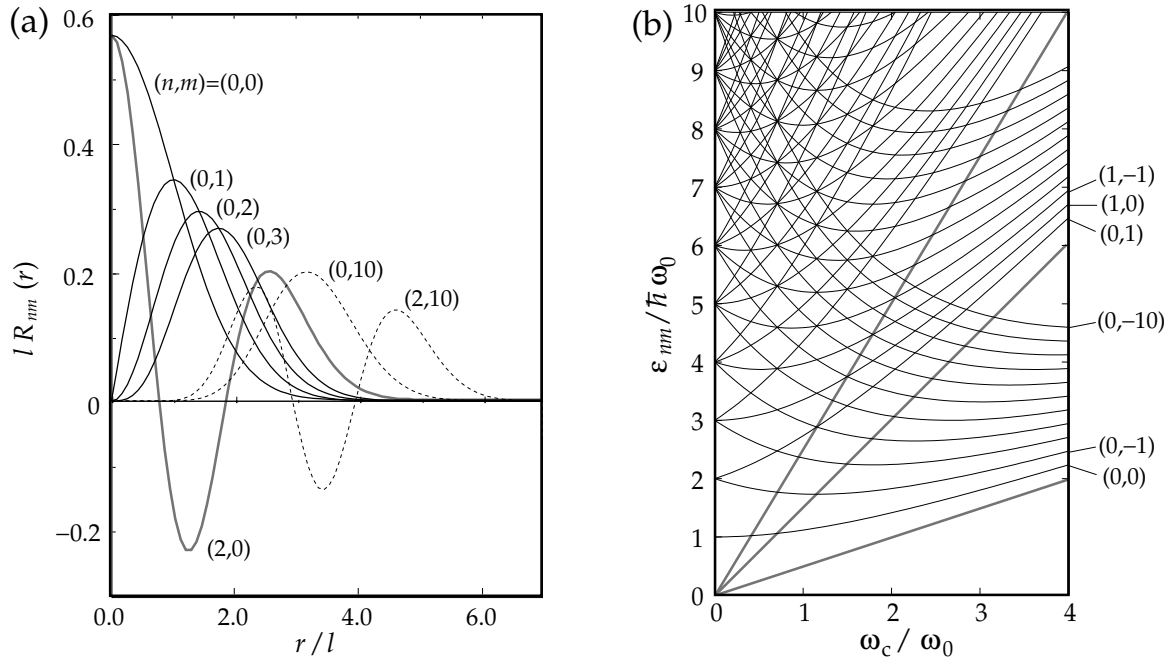


ABBILDUNG 1.1: (a) FD-Wellenfunktionen $R_{nm}(r)$ für ausgewählte n, m . (b) Eigenwerte des Hamilton-Operators $\hat{h}_0$ (1.5) in Abhängigkeit von ω_c . Die grauen Linien markieren die Landau-Niveaus, denen sich die Eigenwerte für $\omega_c/\omega_0 \rightarrow \infty$ asymptotisch nähern.

Das Energiespektrum der Fock-Darwin-(FD)-Wellenfunktionen ist gekennzeichnet durch

$$\epsilon_{nm} = \hbar\omega_h(2n + |m| + 1) + \frac{\hbar\omega_c}{2}m. \quad (1.23)$$

Der Zusammenhang zwischen den Quantenzahlen (n_+, n_-) aus der algebraischen Methode und den Quantenzahlen (n, m) ist durch $m = n_+ - n_-$ und $n = \min(n_+, n_-)$ gegeben, und es gilt mit (1.18)

$$\alpha_{n_+, n_-}(\mathbf{r}) = \psi_{\min(n_+, n_-), n_+ - n_-}(\mathbf{r}, \varphi) = R_{\min(n_+, n_-), |n_+ - n_-|}(\mathbf{r}) e^{i(n_+ - n_-)\varphi}. \quad (1.24)$$

In Abbildung 1.1(a) sind einige der Wellenfunktionen $R_{nm}(r)$ und in (b) die Eigenenergien ϵ_{nm} als Funktion des Magnetfelds dargestellt. Die Schalenstruktur des Spektrums im verschwindenden Magnetfeld ist das Ergebnis von Zeitumkehr-Symmetrie (Entartung bezüglich $\pm m$) und der Entartung von Zuständen mit gleichem $2n + |m|$, eine Besonderheit des parabolischen Potentials.

Für große Magnetfelder, d.h. $\omega_c/\omega_0 \gg 1$, konvergieren die Einteilchen-Niveaus zu den Landau-Niveaus

$$E_{n_L} = \hbar\omega_c(n_L + \frac{1}{2}) \quad (1.25)$$

mit der Landau-Quantenzahl $n_L = n + (|m| + m)/2$.

1.1.4 Symmetrien des Einteilchen-Systems

Wie schon in den vorangehenden Abschnitten deutlich wurde, manifestiert sich die axiale Symmetrie des Hamilton-Operators in Form des Kommutators $[\hat{h}_0, \hat{l}_z] = 0$, d.h. die z -Komponente des Drehimpulses $\hat{l}_z$ ist eine gute Quantenzahl. (Nur im Fall $B = 0$ ist der mechanische Drehimpuls $\mathbf{r} \times (\mathbf{p} + e\mathbf{A})$ mit dem kanonischen Drehimpuls $\hat{l}_z$ identisch, woraus folgt, daß der mechanische Drehimpuls für $B \neq 0$ keine Erhaltungsgröße ist²⁷.) Da der Hamilton-Operator nicht von den Spinkoordinaten abhängt, vertauschen auch das Gesamtspinquadrat $\hat{s}^2$ und eine Spinkomponente, z.B. $\hat{s}_z$, mit dem Hamilton-Operator. Das bleibt auch bei Berücksichtigung der Zeeman-Energie für ein Magnetfeld in z -Richtung richtig, da der Beitrag der Zeeman-Energie zum Hamiltonian proportional zu $\hat{s}_z$ ist. Zusammenfassend gilt also

$$[\hat{h}_0, \hat{s}^2] = [\hat{h}_0, \hat{s}_z] = [\hat{h}_0, \hat{l}_z] = 0. \quad (1.26)$$

Eine weitere Symmetrie ist die dynamische Symmetrie (SU2) des Systems aufgrund des harmonischen Potentials. Sie tritt bei $B = 0$ auf und führt zu den bereits erwähnten charakteristischen Entartungen im Spektrum des zweidimensionalen harmonischen Oszillators ohne Magnetfeld.

1.2 Das Vielteilchen-System

Wir betrachten jetzt ein System von N wechselwirkenden Elektronen im harmonischen Potential, d.h. wir erweitern den Hamilton-Operator um die Coulomb-Wechselwirkung. Wie zuvor verzichten wir an dieser Stelle aus Gründen der Übersichtlichkeit auf den Zeeman-Term; die Notation aus dem vorangegangenen Abschnitt wird übernommen. Dann lautet der Hamilton-Operator in Ortsdarstellung

$$\begin{aligned} \hat{H} &= \sum_{j=1}^N \left(\frac{1}{2m^*} (\mathbf{p}_j + e\mathbf{A}(\mathbf{r}_j))^2 + \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 \mathbf{r}_j^2 \right) + \frac{1}{2} \sum_{j,k=1}^N \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k|} \\ &= \sum_{j=1}^N \left(\frac{1}{2m^*} \mathbf{p}_j^2 + \frac{1}{2} m^* \omega_h^2 \mathbf{r}_j^2 + \frac{\omega_c}{2} \hat{l}_j \right) + \frac{1}{2} \sum_{j,k=1}^N \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k|}. \end{aligned} \quad (1.27)$$

Die Slater-Determinanten, d.h. die antisymmetrisierten Zustände aus dem Produkt-Hilbertraum der Einteilchen-Hilberträume, bilden ein Erzeugendensystem des Produktraums der Elektronen, wobei durch die Antisymmetrisierung dem Pauli-Prinzip für Fermionen Rechnung getragen wird. Prinzipiell ist jede Einteilchen-Basis geeignet, aber für die vorliegende Problematik ist die FD-Basis die beste Wahl, da sie, wie später deutlich wird, konzeptionelle und numerische Vorteile (vgl. Paragraph 4.3) bietet.

Die Slater-Determinanten sind definiert durch

$$\Psi_{(n_+ n_- \sigma)_1, \dots, (n_+ n_- \sigma)_N}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) = \frac{1}{\sqrt{N!}} \sum_{\mathcal{P}} (-1)^{\varepsilon(\mathcal{P})} \prod_{j=1}^N \alpha_{(n_+ n_-)_{\mathcal{P}(j)}}(\mathbf{r}_j) |\sigma_{\mathcal{P}(j)}\rangle^{(j)}. \quad (1.28)$$

Dabei wird über alle Permutationen $\mathcal{P}$ von Quantenzahlen summiert, und $\varepsilon(\mathcal{P})$ bezeichnet die Fehlstände der Permutation $\mathcal{P}$. Offensichtlich sind alle Slater-

Determinanten, in denen mindestens zwei Einteilchen-Quantenzahlen übereinstimmen, identisch Null gemäß Pauli-Prinzip. Unterscheiden sich zwei Slater-Determinanten nur in der Anordnung der Einteilchen-Quantenzahlen, so sind sie linear abhängig. Deshalb stellt die Menge aller Slater-Determinanten ein Erzeugendensystem, aber keine Basis dar. Diese entsteht durch eine geeignete Einschränkung: Man definiert eine bijektive Abbildung ζ der Einteilchen-Quantenzahlen $(n_+ n_- \sigma)$ auf die natürlichen Zahlen. Dann bilden z.B. alle Slater-Determinanten

$$\{\Psi_{(n_+ n_- \sigma)_1, \dots, (n_+ n_- \sigma)_N}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) : \zeta((n_+ n_- \sigma)_1) < \zeta((n_+ n_- \sigma)_2) < \dots < \zeta((n_+ n_- \sigma)_N)\} \quad (1.29)$$

eine Basis.

Eine alternative Darstellung ist die zweite Quantisierung, die insbesondere auch für die numerische Berechnung von Eigenzuständen im Rahmen der ED von struktureller Bedeutung ist. Wie zuvor legen wir als Einteilchen-Basis die FD-Basis zugrunde. Im folgenden werden die Operatoren zur Erzeugung bzw. Vernichtung eines Elektrons mit den Quantenzahlen (n_+, n_-, σ) (n_+ und n_- sind die Quantenzahlen aus der algebraischen Darstellung des zweidimensionalen isotropen harmonischen Oszillators, ergänzt um die Spin-Quantenzahl $\sigma = \pm 1 = \uparrow \downarrow$) mit $c_{n_+ n_- \sigma}^\dagger$ bzw. $c_{n_+ n_- \sigma}$ bezeichnet. Der Zahloperator $\hat{n}_{n_+ n_- \sigma}$ ist durch $\hat{n}_{n_+ n_- \sigma} = c_{n_+ n_- \sigma}^\dagger c_{n_+ n_- \sigma}$ definiert. Die Erzeuger und Vernichter erfüllen die üblichen Antikommutatorrelationen

$$[c_{n_+ n_- \sigma}, c_{n'_+ n'_- \sigma'}^\dagger]_+ = \delta_{n_+, n'_+} \delta_{n_-, n'_-} \delta_{\sigma, \sigma'} \quad (1.30)$$

$$[c_{n_+ n_- \sigma}, c_{n'_+ n'_- \sigma'}]_+ = [c_{n_+ n_- \sigma}^\dagger, c_{n'_+ n'_- \sigma'}^\dagger]_+ = 0. \quad (1.31)$$

Unter Beachtung dieser Beziehungen lassen sich die Slater-Determinanten durch wiederholte Anwendung der Erzeuger auf den Vakuum-Zustand $|0\rangle$ generieren

$$|(n_+ n_- \sigma)_1, \dots, (n_+ n_- \sigma)_N\rangle_{\text{SL}} = \prod_{n_+ n_- \sigma} (c_{n_+ n_- \sigma}^\dagger)^{n_{n_+ n_- \sigma}} |0\rangle \quad (1.32)$$

mit den Besetzungszahlen

$$\hat{n}_{n_+ n_- \sigma} |(n_+ n_- \sigma)_1, \dots, (n_+ n_- \sigma)_N\rangle_{\text{SL}} = n_{n_+ n_- \sigma} |(n_+ n_- \sigma)_1, \dots, (n_+ n_- \sigma)_N\rangle_{\text{SL}}. \quad (1.33)$$

Offensichtlich nimmt $n_{n_+ n_- \sigma}$ nur die Werte 1 oder 0 an, falls der entsprechende Zustand $(n_+ n_- \sigma)$ in der Slater-Determinante auftritt oder nicht. Als technisches Detail ist zu erwähnen, daß die Erzeuger in 1.32 immer in derselben Reihenfolge auf den Vakuumzustand angewendet werden, um z.B. die korrekten Vorzeichen von Matrixelementen zu erhalten.

In der Darstellung der zweiten Quantisierung lautet der Vielteilchen-Hamilton-Operator

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \sum_{n_+ n_- \sigma} \langle n_+ n_- \sigma | \hat{H}_0 | n_+ n_- \sigma \rangle \hat{c}_{n_+ n_- \sigma}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \sigma} \\ & + \frac{1}{2} \sum_{(n_+ n_-)_1 (n_+ n_-)_2 (n_+ n_-)_3 (n_+ n_-)_4 \sigma \sigma'} \langle (n_+ n_-)_1 (n_+ n_-)_2 | \hat{W} | (n_+ n_-)_3 (n_+ n_-)_4 \rangle \times \\ & \times \hat{c}_{(n_+ n_-)_1 \sigma}^\dagger \hat{c}_{(n_+ n_-)_2 \sigma'}^\dagger \hat{c}_{(n_+ n_-)_3 \sigma'} \hat{c}_{(n_+ n_-)_4 \sigma}. \end{aligned} \quad (1.34)$$

Die Matrixelemente $\langle n_+ n_- \sigma | \hat{H}_0 | n_+ n_- \sigma \rangle$ des Einteilchen-Systems (1.1) sind die FD-Energien (der algebraischen Darstellung) (1.15), ergänzt um die Zeeman-Energie (1.2). Die Matrixelemente der Coulomb-Wechselwirkung $\hat{W}$

$$\begin{aligned} & \langle (n_+ n_-)_1 (n_+ n_-)_2 | \hat{W} | (n_+ n_-)_3 (n_+ n_-)_4 \rangle := \\ & = {}^{(2)} \langle (n_+ n_-)_1 | {}^{(1)} \langle (n_+ n_-)_2 | \hat{W} | (n_+ n_-)_3 \rangle {}^{(1)} | (n_+ n_-)_4 \rangle {}^{(2)} \end{aligned} \quad (1.35)$$

können analytisch berechnet werden (vgl. Hawrylak (1993⁵⁶) und Anhang A).

1.2.1 Symmetrien des Vielteilchen-Systems

Die Symmetrien des Einteilchen-Systems übertragen sich auch auf das Vielteilchen-System. Da der Vielteilchen-Hamiltonian (1.27) ebenfalls spin-unabhängig ist bzw. im Fall der Zeeman-Energie einen Term proportional zu $\hat{S}_z = \sum_{j=1}^N [\hat{s}_j]_z$ hat, sind das Gesamtspinquadrat $\hat{S}^2 = (\sum_{j=1}^N \hat{s}_j)^2$ und $\hat{S}_z$ gute Quantenzahlen. Eine kurze Rechnung liefert die Operatoren in zweiter Quantisierung

$$\hat{S}_+ / \hbar = \sum_{n_+ n_-} \hat{c}_{n_+ n_- \uparrow}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \downarrow} \quad (1.36)$$

$$\hat{S}_- / \hbar = \sum_{n_+ n_-} \hat{c}_{n_+ n_- \downarrow}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \uparrow} \quad (1.37)$$

$$\hat{S}_z / \hbar = \sum_{n_+ n_- \sigma} \frac{\sigma}{2} \hat{c}_{n_+ n_- \sigma}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \sigma} \quad (1.38)$$

$$\hat{S}^2 / \hbar^2 = [\hat{S}_+ \hat{S}_- + \hat{S}_z (\hat{S}_z - \hbar)] / \hbar^2 = N/2 + \hat{S}_z^2 / \hbar^2 - \sum_{n_+ n_- n'_+ n'_-} \hat{c}_{n'_+ n'_- \uparrow}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \downarrow}^\dagger \hat{c}_{n'_+ n'_- \downarrow} \hat{c}_{n_+ n_- \uparrow}. \quad (1.39)$$

Ebenso weist das Vielteilchen-System Axialsymmetrie auf, d.h. $\hat{L} = \sum_{j=1}^N \hat{l}_{zj}$ kommutiert mit $\hat{H}$. Für den Einteilchen-Anteil des Hamilton-Operators ist die Behauptung trivial, für die Coulomb-Wechselwirkung ist sie am einfachsten anhand der Struktur der Coulomb-Matrixelemente (A.26) einzusehen. Das Kronecker-Delta in Gleichung (A.26) stellt sicher, daß ein Vielteilchen-Zustand durch Coulomb-Wechselwirkung nur in Zustände mit gleichem Gesamtdrehimpuls gestreut wird. Die Darstellung in zweiter Quantisierung lautet

$$\hat{L} / \hbar = \sum_{n_+ n_- \sigma} (n_+ - n_-) \hat{c}_{n_+ n_- \sigma}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \sigma}. \quad (1.40)$$

Neben den bereits besprochenen Symmetrien existiert für das harmonische Potential noch eine zusätzliche (dynamische) Symmetrie, die die Separation von Schwerpunkt-(CM)- und Relativkoordinaten erlaubt und für das verallgemeinerte Kohnsche Theorem^{80,81} verantwortlich ist. (Das normale Kohnsche Theorem gilt für Potentiale $V_{\text{ext}} = \text{const.}$; in diesen Systemen ist ebenfalls eine Trennung von Schwerpunkt- und Relativbewegung realisierbar.) Wie von Jacak et al. (1998⁷⁰) für Quantenpunkte mit axialsymmetrischem, parabolischem Potential gezeigt wurde, läßt sich der Hamiltonian des wechselwirkenden Vielteilchen-Systems in Ortsdarstellung unter Verwendung von Jacobi-Koordinaten folgendermaßen zerlegen

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{CM}}(\mathbf{R}; \mathbf{P}) + \hat{H}_{\text{rel}}(\boldsymbol{\rho}_1, \dots, \boldsymbol{\rho}_{N-1}; \boldsymbol{\pi}_1, \dots, \boldsymbol{\pi}_{N-1}). \quad (1.41)$$

Dabei sind

$$\begin{aligned} N\mathbf{R} &= \sum_{j=1}^N \mathbf{r}_j, \\ \mathbf{P} &= \sum_{j=1}^N \mathbf{p}_j \end{aligned} \quad (1.42)$$

die CM-Koordinaten und -impulse. Für die Definition der Relativkoordinaten $\boldsymbol{\rho}_1, \dots, \boldsymbol{\rho}_{N-1}$ und -impulse $\boldsymbol{\pi}_1, \dots, \boldsymbol{\pi}_{N-1}$ sei auf Jacak et al. (1998⁷⁰) verwiesen. Da die transformierten Koordinaten die üblichen Vertauschungsrelationen erfüllen

$$[\mathbf{R}_x, \mathbf{P}_x] = [\mathbf{R}_y, \mathbf{P}_y] = [\boldsymbol{\rho}_{j_x}, \boldsymbol{\pi}_{j_x}] = [\boldsymbol{\rho}_{j_y}, \boldsymbol{\pi}_{j_y}] = i\hbar \quad (1.43)$$

(alle anderen Kombinationen liefern Null), vertauschen die Hamilton-Operatoren für die CM- und Relativbewegung

$$[\hat{H}_{\text{CM}}, \hat{H}_{\text{rel}}] = [\hat{H}_{\text{CM}}, \hat{H}] = 0. \quad (1.44)$$

Im nächsten Schritt werden wir die Darstellung der CM-Bewegung in zweiter Quantisierung ableiten. Wir fassen $\hat{H}_{\text{CM}}$ im Sinne eines Einteilchen-Hamilton-Operators als Funktion des Ortes $\mathbf{R}$ und des Impulses $\mathbf{P}$ auf und formen ihn um zu

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{CM}} &= \frac{1}{2Nm^*} \mathbf{P}^2 + \frac{1}{2} Nm^* \omega_h \mathbf{R}^2 + \frac{\omega_c}{2} [\mathbf{R} \times \mathbf{P}]_z \\ &= \hbar\omega_+ (\hat{A}_+^\dagger \hat{A}_+ + 1/2) + \hbar\omega_- (\hat{A}_-^\dagger \hat{A}_- + 1/2) \end{aligned} \quad (1.45)$$

unter Verwendung von Bosonerzeugern

$$\hat{A}_\pm^\dagger = \left(\frac{\mathbf{R}_x \pm i\mathbf{R}_y}{2\mathcal{L}} - \frac{i\mathcal{L}}{2\hbar} (\mathbf{P}_x \pm i\mathbf{P}_y) \right) \quad (1.46)$$

und Vernichtern (vgl. Gleichungen (1.17))

$$\hat{A}_\pm = \left(\frac{\mathbf{R}_x \mp i\mathbf{R}_y}{2\mathcal{L}} + \frac{i\mathcal{L}}{2\hbar} (\mathbf{P}_x \mp i\mathbf{P}_y) \right) \quad (1.47)$$

($\mathcal{L} = l/\sqrt{N}$ ist die Hybridlänge der CM-Bewegung).

Falls wir für $\mathbf{R}$ und $\mathbf{P}$ in den Gleichungen (1.46) und (1.47) die Definition der CM-Koordinaten (1.42) einsetzen

$$\hat{A}_\pm^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{j=1}^N \left(\frac{\mathbf{r}_{j_x} \pm i\mathbf{r}_{j_y}}{2l} - \frac{il}{2\hbar} (\mathbf{p}_{j_x} \pm i\mathbf{p}_{j_y}) \right) \quad (1.48)$$

$$\hat{A}_\pm = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{j=1}^N \left(\frac{\mathbf{r}_{j_x} \mp i\mathbf{r}_{j_y}}{2l} + \frac{il}{2\hbar} (\mathbf{p}_{j_x} \mp i\mathbf{p}_{j_y}) \right), \quad (1.49)$$

erkennen wir, daß $\hat{A}_\pm^\dagger$ und $\hat{A}_\pm$ die Form normaler Vielteilchen-Operatoren¹¹⁵ annehmen, da sie symmetrisch in allen N Koordinaten sind. Zur Berechnung der Matrixelemente von $\hat{A}_\pm^{(\dagger)}$ nützen wir die Bosonoperatoren des Einteilchen-Problems (1.17) und erhalten

$$\begin{aligned}\hat{A}_+^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{nmn'm'\sigma\sigma'} \left\langle n'm'\sigma' \left| \frac{\mathbf{r}_x + i\mathbf{r}_y}{2l} - \frac{il}{2\hbar}(\mathbf{p}_x + i\mathbf{p}_y) \right| nm\sigma \right\rangle \hat{c}_{n'm'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{nm\sigma} \\ &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{nmn'm'\sigma\sigma'} \left\langle n'm'\sigma' \left| \hat{a}_+^\dagger \right| nm\sigma \right\rangle \hat{c}_{n'm'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{nm\sigma} \\ &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{nm\sigma} \sqrt{n+1} \hat{c}_{(n+1)m\sigma}^\dagger \hat{c}_{nm\sigma}\end{aligned}\quad (1.50)$$

und analog

$$\hat{A}_-^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{nm\sigma} \sqrt{m+1} \hat{c}_{n(m+1)\sigma}^\dagger \hat{c}_{nm\sigma} \quad (1.51)$$

$$\hat{A}_+ = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{nm\sigma} \sqrt{n} \hat{c}_{(n-1)m\sigma}^\dagger \hat{c}_{nm\sigma} \quad (1.52)$$

$$\hat{A}_- = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{nm\sigma} \sqrt{m} \hat{c}_{n(m-1)\sigma}^\dagger \hat{c}_{nm\sigma}. \quad (1.53)$$

Jetzt können wir die CM-Operatoren in zweiter Quantisierung schreiben

$$\hat{C}_+ = \hat{A}_+^\dagger \hat{A}_+ = \frac{1}{N} \sum_{n'm'\sigma'nm\sigma} \sqrt{n'+1} \sqrt{n} \hat{c}_{(n'+1)m'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{n'm'\sigma'} \hat{c}_{(n-1)m\sigma}^\dagger \hat{c}_{nm\sigma} \quad (1.54)$$

$$\hat{C}_- = \hat{A}_-^\dagger \hat{A}_- = \frac{1}{N} \sum_{n'm'\sigma'nm\sigma} \sqrt{m'+1} \sqrt{m} \hat{c}_{n'(m'+1)\sigma'}^\dagger \hat{c}_{n'm'\sigma'} \hat{c}_{n(m-1)\sigma}^\dagger \hat{c}_{nm\sigma}. \quad (1.55)$$

Da $[\hat{A}_+^{(\dagger)}, \hat{A}_-^{(\dagger)}] = 0$ gilt, kommutieren auch die Operatoren $\hat{C}_+$ und $\hat{C}_-$. Aus der Definition von $\hat{C}_+$ und $\hat{C}_-$ als Funktionen der CM-Koordinaten $\mathbf{R}$ und $\mathbf{P}$ können wir sofort schließen, daß $\hat{C}_+$ und $\hat{C}_-$ mit $\hat{H}_{\text{rel}}$ vertauschen. Deshalb stellen die entsprechenden Eigenwerte C_+ und C_- zwei gute Quantenzahlen des Systems dar, und es gilt

$$[\hat{C}_+, \hat{H}] = [\hat{C}_-, \hat{H}] = 0. \quad (1.56)$$

Ferner kann man sich leicht davon überzeugen, daß $\hat{C}_+$ und $\hat{C}_-$ auch mit dem Drehimpuls $\hat{L}$ vertauschen.

Die Operatoren $\hat{A}_+^\dagger$ und $\hat{A}_-^\dagger$ ($\hat{A}_+$ und $\hat{A}_-$) können als Erzeugungs- (Vernichtungs-) Operatoren für kollektive Anregungen des Vielteilchen-Systems interpretiert werden. Sie erhöhen (erniedrigen) die Energie des Systems um $\hbar\omega_\pm$

$$[\hat{H}, \hat{A}_\pm^\dagger] = [\hat{H}_{\text{CM}}, \hat{A}_\pm^\dagger] = \hbar\omega_\pm \hat{A}_\pm^\dagger \quad (1.57)$$

$$[\hat{H}, \hat{A}_\pm] = [\hat{H}_{\text{CM}}, \hat{A}_\pm] = -\hbar\omega_\pm \hat{A}_\pm. \quad (1.58)$$

Zusammenfassend halten wir fest, daß die Operatoren $\hat{H}$, $\hat{C}_+$, $\hat{C}_-$, $\hat{L}_z$, $\hat{S}^2$ und $\hat{S}_z$ paarweise miteinander kommutieren. Die oben nicht explizit erwähnten Vertauschungsrelationen sind trivial. Damit existiert ein vollständiges Orthonormalsystem aus Eigenfunktionen zu den genannten Operatoren. Aus rechentechnischen Gründen resultierende Einschränkungen werden in Abschnitt 4.2.1 diskutiert.

An dieser Stelle ist noch ein kurzer Kommentar zur Vertauschungsrelation $[\hat{A}_\pm, \hat{W}] = 0$ angebracht. Dieser Kommutator ist in Ortsdarstellung unter Verwendung von Jacobi-Koordinaten einfach einzusehen. Wechselt man allerdings die Darstellung und versucht, denselben Ausdruck in zweiter Quantisierung zu berechnen, ist das Ergebnis eine nicht-triviale Summenregel für die Coulomb-Matrixelemente

$$\begin{aligned} & \sqrt{m_4 + 1} \langle n_1 m_1, n_2 m_2 | \hat{W} | n_3 m_3, n_4 (m_4 + 1) \rangle \\ & + \sqrt{m_3 + 1} \langle n_1 m_1, n_2 m_2 | \hat{W} | n_3 (m_3 + 1), n_4 m_4 \rangle \\ & - \sqrt{m_2} \langle n_1 m_1, n_2 (m_2 - 1) | \hat{W} | n_3 m_3, n_4 m_4 \rangle \\ & - \sqrt{m_1} \langle n_1 (m_1 - 1), n_2 m_2 | \hat{W} | n_3 m_3, n_4 m_4 \rangle = 0. \end{aligned} \quad (1.59)$$

Ein direkter Beweis dieser Summenregel erweist sich als kompliziert, obwohl er in Spezialfällen durchführbar ist.¹⁷¹ Gleichung (1.59) ist übrigens nicht nur für das Coulomb-Potential richtig, sondern für alle Wechselwirkungs-Potentiale, die nur von $|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ abhängen.

Es sei noch angemerkt, daß die Lösung der Schrödinger-Gleichung, ausgehend von Jacobi-Koordinaten und der Ortsdarstellung der Separation in CM- und Relativbewegung, durchaus möglich ist. Das CM-Problem ist zwar trivial, aber dann sind auch die Coulomb-Matrixelemente entsprechend auf die Relativkoordinaten zu transformieren. Außerdem ist die Realisierung des Pauli-Prinzips nur mit Hilfe von gruppentheoretischen Methoden sicherzustellen. Insbesondere die beiden zuletzt genannten Probleme erweisen sich in der numerischen Implementierung als sehr rechenintensiv.¹⁶⁰

1.2.2 Abbildung auf das magnetfeldfreie System und Zeitumkehrsymmetrie

Wir betrachten erneut den Vielteilchen-Hamilton-Operator in Ortsdarstellung (1.27), aber jetzt unter Berücksichtigung der expliziten Abhängigkeit von den Parametern N , ω_0 und ω_c ($\omega_c \propto B$)

$$\hat{H}(\omega_0, \omega_c, N) = \sum_{j=1}^N \left(\frac{1}{2m^*} \mathbf{p}_j^2 + \frac{1}{2} m^* \omega_h^2 \mathbf{r}_j^2 + \frac{\omega_c}{2} \hat{l}_j \right) + \frac{1}{2} \sum_{j,k=1}^N \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k|}. \quad (1.60)$$

Der Hamilton-Operator (1.60) läßt sich unter Verwendung des Gesamtdrehimpulses $\hat{L}$ umschreiben

$$\hat{H}(\omega_0, \omega_c, N) = \sum_{j=1}^N \left(\frac{1}{2m^*} \mathbf{p}_j^2 + \frac{1}{2} m^* \omega_h^2 \mathbf{r}_j^2 \right) + \frac{1}{2} \sum_{j,k=1}^N \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k|} + \frac{\omega_c}{2} \hat{L}. \quad (1.61)$$

Ein Vergleich mit (1.60) ermöglicht es, die beiden Summen auf der rechten Seite von Gleichung (1.61) mit dem Hamilton-Operator eines Quantendots mit Confinement-Energie $\sqrt{\omega_0^2 + \omega_c^2/4}$ bei $B = 0$ zu identifizieren

$$\hat{H}(\omega_0, \omega_c, N) = \hat{H}(\sqrt{\omega_0^2 + \omega_c^2/4}, 0, N) + \frac{\omega_c}{2} \hat{L}. \quad (1.62)$$

Diese Darstellung erlaubt, aus dem Spektrum und den Eigenfunktionen des Hamilton-Operators $\hat{H}(\Omega, 0, N)$ die Spektren und Eigenfunktionen aller Hamilton-Operatoren $\hat{H}(\omega_0, \omega_c, N)$ mit $\Omega = \sqrt{\omega_0^2 + \omega_c^2}/4$ ohne Rechnung zu erhalten. Gleichung (1.62) reduziert somit den Parameterraum (ω_0, ω_c, N) von drei auf zwei Dimensionen (Ω, N) . Eine ähnliche Umformung führten Capelle & Vignale (2002¹⁹) für natürliche Atome durch. Allerdings lassen sich aufgrund der anderen Struktur des externen Potentials die entstehenden Terme nicht so kompakt zusammenfassen. Das Ziel der Arbeit von Capelle & Vignale ist die Untersuchung der Eindeutigkeit der Potentiale in der Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie. In diesem Kontext wird die Bedeutung der Gleichung (1.62) in Abschnitt 5.1 noch einmal diskutiert.

Ein interessanter Aspekt an Gleichung (1.60) ist auch die Struktur des Terms $\frac{\hbar\omega_c}{2}\hat{L}$, die der einer Zeeman-Energie entspricht. Wie die Zeeman-Energie kann auch $\frac{\hbar\omega_c}{2}\hat{L}$ nach der eigentlichen Rechnung hinzugefügt werden, weil die Eigenfunktionen des Hamilton-Operators als Eigenfunktionen der Zeeman-Energie bzw. des Terms $\frac{\hbar\omega_c}{2}\hat{L}$ gewählt werden können. Da die Magnetfeldabhängigkeit des Hamilton-Operators auf der rechten Seite in (1.62) eliminiert wurde, kann zusätzlich die Zeitumkehrsymmetrie ausgenutzt werden. Durch Anwendung des Zeitumkehroperators auf einen Eigenzustand $|\Psi_L\rangle$ mit der Energie E_L erhält man den Eigenzustand $|\Psi_{-L}\rangle$ mit der Eigenenergie $E_{-L} = E_L$. (Natürlich bleiben auch bei Berücksichtigung der Zeeman-Energie alle obigen Aussagen richtig.)

1.3 Dichten und Stromdichten

Die Berührungspunkte zwischen Dichtefunktional-Theorie und ED sind neben der Grundzustandsenergie die Grundzustandsdichten. In einem kurzen Überblick werden die Eigenschaften dieser entscheidenden Größen dargestellt.

Ausgangspunkt ist ein beliebiger normierter Zustand $|\Psi\rangle$ des Vielteilchen-Systems, der als Linearkombination von Slater-Determinanten $|\Psi_k\rangle$ (1.32) vorliegt

$$|\Psi\rangle = \sum_k \gamma_k |\Psi_k\rangle. \quad (1.63)$$

Dann ist der Erwartungswert einer Observablen $\hat{O}$

$$O = \langle \Psi | \hat{O} | \Psi \rangle = \sum_{k'k} \gamma_{k'}^* \gamma_k \langle \Psi_{k'} | \hat{O} | \Psi_k \rangle. \quad (1.64)$$

Da die Slater-Determinanten $|\Psi_k\rangle$ mit Hilfe der FD-Basis erzeugt wurden, ist eine Darstellung der Observablen $\hat{O}$ in zweiter Quantisierung mit Hilfe derselben Einteilchen-Basis sinnvoll. Im Fall eines Einteilchen-Operators erhalten wir

$$\hat{O} = \sum_{n'_+ n'_- \sigma' n_+ n_- \sigma} \langle n'_+ n'_- \sigma' | \hat{O}^{(1)} | n_+ n_- \sigma \rangle \hat{c}_{n'_+ n'_- \sigma'}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \sigma} \quad (1.65)$$

und

$$O = \langle \Psi | \hat{O} | \Psi \rangle = \sum_{k'k} \gamma_{k'}^* \gamma_k \sum_{n'_+ n'_- \sigma' n_+ n_- \sigma} \langle n'_+ n'_- \sigma' | \hat{O}^{(1)} | n_+ n_- \sigma \rangle \langle \Psi_{k'} | \hat{c}_{n'_+ n'_- \sigma'}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \sigma} | \Psi_k \rangle. \quad (1.66)$$

Für die Spindichte $\hat{n}_\tau(\mathbf{r})$ und die (Spin-)Stromdichte $\hat{\mathbf{j}}_\tau(\mathbf{r})$ sind die Matrixelemente des entsprechenden Einteilchen-Operators durch

$$\langle n'_+ n'_- \sigma' | \hat{n}_\tau(\mathbf{r})^{(1)} | n_+ n_- \sigma \rangle = \alpha_{n'_+ n'_-}^*(\mathbf{r}) \alpha_{n_+ n_-}(\mathbf{r}) \delta_{\tau\sigma'} \delta_{\tau\sigma} \quad (1.67)$$

$$\begin{aligned} \langle n'_+ n'_- \sigma' | \hat{\mathbf{j}}_\tau(\mathbf{r})^{(1)} | n_+ n_- \sigma \rangle &= \frac{\hbar}{2m^* i} \left\{ \alpha_{n'_+ n'_-}^*(\mathbf{r}) [\nabla \alpha_{n_+ n_-}(\mathbf{r})] - [\nabla \alpha_{n'_+ n'_-}^*(\mathbf{r})] \alpha_{n_+ n_-}(\mathbf{r}) \right\} \\ &\times \delta_{\tau\sigma'} \delta_{\tau\sigma} + \frac{e}{m^*} \langle n'_+ n'_- \sigma' | \hat{n}_\tau(\mathbf{r})^{(1)} | n_+ n_- \sigma \rangle A(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (1.68)$$

gegeben. Dabei ist

$$\begin{aligned} \langle n'_+ n'_- \sigma' | \hat{\mathbf{j}}_{\mathbf{p}\tau}(\mathbf{r})^{(1)} | n_+ n_- \sigma \rangle &= \\ &= \frac{\hbar}{2m^* i} \left\{ \alpha_{n'_+ n'_-}^*(\mathbf{r}) [\nabla \alpha_{n_+ n_-}(\mathbf{r})] - [\nabla \alpha_{n'_+ n'_-}^*(\mathbf{r})] \alpha_{n_+ n_-}(\mathbf{r}) \right\} \delta_{\tau\sigma'} \delta_{\tau\sigma} \end{aligned} \quad (1.69)$$

der paramagnetische Beitrag zur Stromdichte, der im Rahmen der Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie eine wichtige Rolle spielt.

Wir wollen uns nun speziell auf Eigenzustände $|\Psi\rangle$ des Hamilton-Operators (1.34) und deren Erwartungswerte konzentrieren. Die durch (1.34) definierte Hamiltonian-Matrix ist reell, da insbesondere die Coulomb-Matrixelemente (1.35) reell sind. Folglich sind auch die Koeffizienten γ_k der Linearkombinationen der Eigenzustände reell und statt (1.66) gilt

$$\begin{aligned} O &= \langle \Psi | \hat{O} | \Psi \rangle = \\ &= \sum_{k'k} \gamma_{k'} \gamma_k \sum_{n'_+ n'_- \sigma' n_+ n_- \sigma} \Re \left(\langle n'_+ n'_- \sigma' | \hat{O}^{(1)} | n_+ n_- \sigma \rangle \right) \langle \Psi_{k'} | \hat{c}_{n'_+ n'_- \sigma'}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \sigma} | \Psi_k \rangle, \end{aligned} \quad (1.70)$$

weil die Matrixelemente $\langle \Psi_{k'} | \hat{c}_{n'_+ n'_- \sigma'}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \sigma} | \Psi_k \rangle$ nur die (reellen) Werte 0, ± 1 annehmen.

Zusätzlich kommutiert $\hat{H}$ mit dem Gesamtdrehimpuls $\hat{L}$, und so können wir ohne Einschränkung annehmen, daß der Eigenzustand $|\Psi\rangle$ von (1.34) auch gleichzeitig Eigenzustand von $\hat{L}$ ist $|\Psi\rangle = |\Psi_L\rangle$. Damit liegen auch alle an der Linearkombination beteiligten Slater-Determinanten $|\Psi_{L,k}\rangle$ in dem entsprechenden Unterraum von $\hat{L}$. Unter diesen Voraussetzungen liefert die Summe über k', k in (1.70) nur Beiträge, falls die Drehimpulse des vernichteten bzw. des erzeugten Zustandes übereinstimmen, d.h. $n'_+ - n'_- = n_+ - n_-$ gilt. Damit folgt aus (1.70)

$$\begin{aligned} O_L &= \langle \Psi_L | \hat{O} | \Psi_L \rangle = \\ &= \sum_{k'k} \gamma_{k'} \gamma_k \sum_{n'_+ n'_- \sigma' n_+ n_- \sigma} \Re \left(\langle n'_+ n'_- \sigma' | \hat{O}^{(1)} | n_+ n_- \sigma \rangle \right) \delta_{n'_+ - n'_-, n_+ - n_-} \times \\ &\quad \times \langle \Psi_{L,k'} | \hat{c}_{n'_+ n'_- \sigma'}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \sigma} | \Psi_{L,k} \rangle. \end{aligned} \quad (1.71)$$

Unter Ausnutzung von (1.24) folgt für die Einteilchen-Matrixelemente der Spindichten

$$\begin{aligned} \delta_{n'_+ - n'_-, n_+ - n_-} \Re \left(\langle n'_+ n'_- \sigma' | \hat{n}_\tau(\mathbf{r})^{(1)} | n_+ n_- \sigma \rangle \right) &= \\ &= \delta_{n'_+ - n'_-, n_+ - n_-} \delta_{\tau\sigma'} \delta_{\tau\sigma} R_{\min(n'_+, n'_-), |n'_+ - n'_-|}(\mathbf{r}) R_{\min(n_+, n_-), |n_+ - n_-|}(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (1.72)$$

und der paramagnetischen Stromdichten

$$\begin{aligned} & \delta_{n'_+-n'_-,n_+-n_-} \Re \left(\langle n'_+ n'_- \sigma' | \hat{j}_{p\tau}(\mathbf{r})^{(1)} | n_+ n_- \sigma \rangle \right) = \\ & = \delta_{n'_+-n'_-,n_+-n_-} \delta_{\tau\sigma'} \delta_{\tau\sigma} \frac{\hbar(n_+ - n_-)}{m^* r} e_\varphi R_{\min(n'_+, n'_-), |n'_+ - n'_-|}(r) R_{\min(n_+, n_-), |n_+ - n_-|}(r). \end{aligned} \quad (1.73)$$

Als Endergebnis erhalten wir die Erwartungswerte der Spindichten

$$\begin{aligned} n_{\tau L}(r) &= \langle \Psi_L | \hat{n}(r) | \Psi_L \rangle = \\ &= \sum_{k'l} \gamma_{k'} \gamma_k \sum_{n'_+ n'_- \sigma' n_+ n_- \sigma} \delta_{\tau\sigma'} \delta_{\tau\sigma} \delta_{n'_+-n'_-,n_+-n_-} R_{\min(n'_+, n'_-), |n'_+ - n'_-|}(r) R_{\min(n_+, n_-), |n_+ - n_-|}(r) \times \\ &\quad \times \langle \Psi_{L,k'} | \hat{c}_{n'_+ n'_- \sigma'}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \sigma} | \Psi_{L,k} \rangle \end{aligned} \quad (1.74)$$

und der (rein azimuthalen) Stromdichten

$$\begin{aligned} j_{p\tau L}(r) &= \langle \Psi_L | \hat{j}_{p\tau}(\mathbf{r}) | \Psi_L \rangle = \\ &= \sum_{k'l} \gamma_{k'} \gamma_k \sum_{n'_+ n'_- \sigma' n_+ n_- \sigma} \delta_{\tau\sigma'} \delta_{\tau\sigma} \delta_{n'_+-n'_-,n_+-n_-} \frac{\hbar(n_+ - n_-)}{m^* r} e_\varphi R_{\min(n'_+, n'_-), |n'_+ - n'_-|}(r) \times \\ &\quad \times R_{\min(n_+, n_-), |n_+ - n_-|}(r) \langle \Psi_{L,k'} | \hat{c}_{n'_+ n'_- \sigma'}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \sigma} | \Psi_{L,k} \rangle \end{aligned} \quad (1.75)$$

$$j_{\tau L}(r) = j_{p\tau L}(r) + e_\varphi \frac{e}{m^*} A_\varphi(r) n_{\tau L}(r). \quad (1.76)$$

Für die Gesamtstromdichte haben wir ausgenutzt, daß sich das Vektorpotential $A(\mathbf{r})$ in symmetrischer Eichung in der Form $A(\mathbf{r}) = e_\varphi A_\varphi(r)$ schreiben läßt.

Bemerkenswert ist, daß sowohl Spindichten wie auch Stromdichten nur Funktionen des Radius r , aber nicht des Winkels φ sind. Das integrierte azimuthale Stromprofil liefert den Ringstrom

$$I_\tau = \int_{r=0}^{\infty} dr e_\varphi \cdot j_\tau(r). \quad (1.77)$$

KAPITEL 2

Grundlagen der Dichtefunktional-Theorie

Die Dichtefunktional-Theorie (DFT) ist ein vielversprechender Ansatz zur Beschreibung des Grundzustands (GZs) eines wechselwirkenden N -Elektronen-Systems auf der Grundlage eines effektiven Einteilchen-Bildes und unter Einschluß aller wesentlichen Elemente wie Coulomb-Abstoßung, Austausch- und Korrelationseffekte.

Die der DFT zugrunde liegende Idee, den GZ durch die Dichte zu beschreiben, wurde von Thomas (1927¹⁵⁷) und Fermi (1928⁴¹) entwickelt (Thomas-Fermi-Methode). Die bestechende Vereinfachung liegt darin, daß für ein d -dimensionales System nur noch die von d Koordinaten abhängige Dichte berechnet werden muß statt eines Vielteilchen-Zustands, der eine Funktion von $N \cdot d$ Koordinaten ist. Dabei wird die kinetische Energie des inhomogenen Systems grob abgeschätzt, Austausch- oder Korrelationseffekte werden komplett vernachlässigt. Eine entscheidende Verbesserung gelang Hohenberg & Kohn (1964⁶⁴), die in dem nach ihnen benannten Theorem beweisen, daß die GZ-Wellenfunktion (unter gewissen Voraussetzungen) ein eindeutiges Funktional der GZ-Dichte $n(\mathbf{r})$ ist. Obwohl die funktionale Abhängigkeit nicht bekannt ist, erlaubt die Abbildung des wechselwirkenden Systems auf ein nicht-wechselwirkendes effektives Einteilchen-System im Rahmen des Kohn-Sham-(KS)-Formalismus (Kohn & Sham (1965⁸²)) und der lokalen Dichtenäherung (LDA) die Berechnung von GZ-Energie und -Dichte des Systems unter Berücksichtigung von Austausch-Korrelations-(XC)-Effekten. Allerdings bleibt der Zugang zu detaillierteren Informationen wie angeregten Zuständen oder Paarkorrelationsfunktionen aufgrund der Unkenntnis der entsprechenden Funktionale verwehrt. Zudem verletzt die LDA die Gültigkeit des Ritzschen Prinzips, d.h. die DFT/LDA-GZ-Energie stellt keine obere Schranke für die exakte GZ-Energie dar. Dennoch zeigt die langjährige Erfahrung mit DFT-Konzepten, daß sie weit über den theoretisch fundierten Gültigkeitsbereich der LDA hinaus gute Ergebnisse liefern.^{33,46}

In diesem Kapitel werden die Grundlagen der Dichtefunktional-Theorie vor dem Hintergrund der Aufgabenstellung, der Extraktion von Austausch-Korrelations-(XC)-Energiedichten aus exakten GZ-Dichten, zusammengefaßt. Wir beginnen mit der ursprünglichen Formulierung des Hohenberg-Kohn-(HK)-Theorems und der Kohn-Sham-(KS)-Gleichungen für unpolarisierte elektronische Systeme und

führen die Erweiterungen auf Spin-Dichtefunktional-Theorie (SDFT) und Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie (CSDFT) ein, die die Ankopplung eines externen Magnetfelds an die Spindichten bzw. an die Spindichten und die orbitale Stromdichte berücksichtigen. Die lokale Dichtenäherung (LDA), die erst die praktische Anwendung der DFT erlaubt, wird mit dem Fokus auf zweidimensionale Systeme vorgestellt, da nur diese in der vorliegenden Arbeit von Bedeutung sind. Insbesondere werden auch die konzeptionellen Probleme der DFT und LDA wie entartete Grundzustände, n - und v -Repräsentabilität sowie verschiedene Parametrisierungen der XC-Energie angesprochen, soweit sie für die Aufgabenstellung relevant sind.

Es ist zu betonen, daß die Neuformulierung der DFT nicht erfolgt, weil das ursprüngliche Konzept durch die Berücksichtigung des Magnetfelds versagen würde. Das Ziel der SDFT bzw. CSDFT ist, eine explizite Abhängigkeit der auftretenden Funktione von externen Feldern zu vermeiden, was wiederum bei der Konstruktion von LDAs vorteilhaft ist.^{33,82}

2.1 Dichtefunktional-Theorie für spin-unpolarisierte Systeme

Wir betrachten den Vielteilchen-Hamilton-Operator

$$\hat{H} = \hat{T} + \hat{W} + \hat{V} \quad (2.1)$$

für ein System aus N Elektronen. Dabei ist $\hat{T}$ die kinetische Energie, $\hat{W}$ die (interne) Coulomb-Wechselwirkung und $\hat{V}$ das externe Potential. Mit Hilfe der Feldoperatoren $\hat{\Psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r})$ und $\hat{\Psi}_\sigma(\mathbf{r})$ für die Spinrichtung σ lauten die kinetische Energie, die Potentiale und der Dichteoperator $\hat{n}(\mathbf{r})$ in zweiter Quantisierung

$$\hat{T} = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \sum_\sigma \int d\mathbf{r} \hat{\Psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r}) \nabla^2 \hat{\Psi}_\sigma(\mathbf{r}) \quad (2.2)$$

$$\hat{W} = \frac{1}{2} \sum_{\sigma\sigma'} \int d\mathbf{r}' \int d\mathbf{r} W(\mathbf{r}', \mathbf{r}) \hat{\Psi}_{\sigma'}^\dagger(\mathbf{r}') \hat{\Psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r}) \hat{\Psi}_\sigma(\mathbf{r}) \hat{\Psi}_{\sigma'}(\mathbf{r}') \quad (2.3)$$

$$\hat{V} = \int d\mathbf{r} V(\mathbf{r}) \hat{n}(\mathbf{r}) \quad (2.4)$$

$$\hat{n}(\mathbf{r}) = \sum_\sigma \hat{\Psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r}) \hat{\Psi}_\sigma(\mathbf{r}). \quad (2.5)$$

2.1.1 Hohenberg-Kohn-Theorem

Ausgehend von Potentialen $\hat{V} \in \mathcal{V}$, für die die stationäre Schrödinger-Gleichung $\hat{H}|\Phi\rangle = E|\Phi\rangle$ zu einem nicht entarteten GZ $|\Psi\rangle \in \psi$ mit $\hat{H}|\Psi\rangle = E_0|\Psi\rangle$ führt, lassen sich die (surjektiven) Abbildungen $\mathcal{C} : \mathcal{V} \rightarrow \psi$, $\hat{V} \mapsto |\Psi\rangle$ und $\mathcal{D} : \psi \rightarrow \mathcal{N}$, $|\Psi\rangle \mapsto n(\mathbf{r})$ konstruieren.* Das HK-Theorem⁶⁴ zeigt durch einen Widerspruchsbeweis, daß die Abbildungen $\mathcal{C}$ und $\mathcal{D}$ auch injektiv und damit bijektiv sind. Potentiale, die sich nur um eine additive Konstante unterscheiden, werden dabei als äquivalent aufgefaßt.

* $\mathcal{V}$, ψ und $\mathcal{N}$ sind die Räume der Potentiale, Wellenfunktionen und GZ-Dichten.

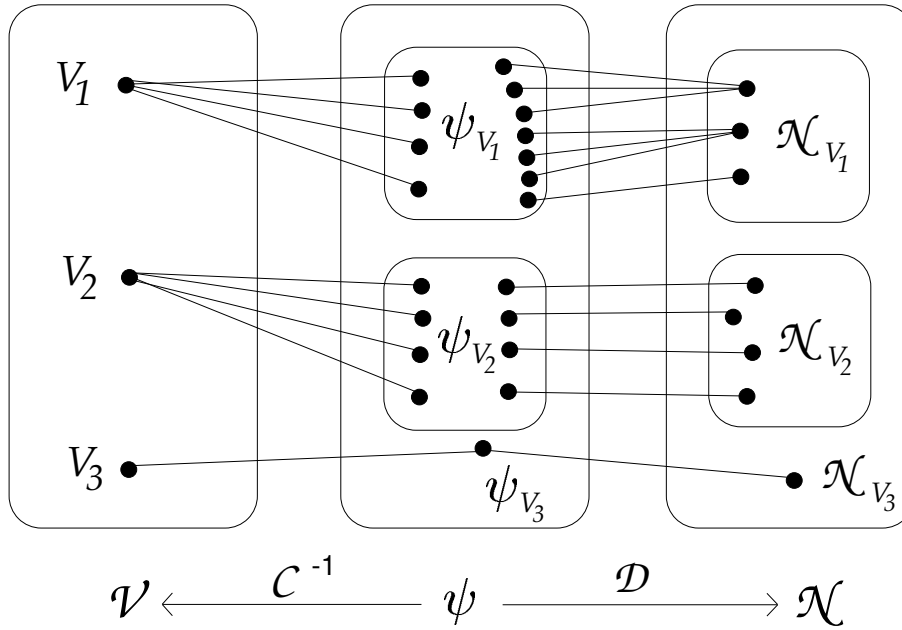


ABBILDUNG 2.1: Zusammenhang zwischen externen Potentialen, Grundzustandswellenfunktionen und -dichten für den Fall entarteter Grundzustände (nach Dreizler & Gross, 1990³³).

Die drei wesentlichen Schlußfolgerungen³³ des HK-Theorems werden im folgenden zusammengefaßt:

Aus der Existenz der Umkehrabbildung $\mathcal{D}^{-1} : \mathcal{N} \rightarrow \psi$, $n(\mathbf{r}) \mapsto |\Psi[n]\rangle$ folgt, daß die GZ-Wellenfunktion ein eindeutiges Funktional der GZ-Dichte ist. Damit ist der GZ-Erwartungswert $O = \langle \Psi[n] | \hat{O} | \Psi[n] \rangle$ einer beliebigen Observablen $\hat{O}$ ebenfalls ein eindeutiges Funktional der GZ-Dichte. Da $\hat{T}$ und $\hat{W}$ fest vorgegeben sind, bestimmt die GZ-Dichte $n(\mathbf{r})$ durch die Umkehrabbildung von $(C\mathcal{D})$, $(C\mathcal{D})^{-1} : \mathcal{N} \rightarrow \mathcal{V}$, $n(\mathbf{r}) \mapsto \hat{V}$, das externe Potential und damit den Hamilton-Operator des Systems.

Seien das externe Potential $\hat{V}_0$ und die zugehörige GZ-Dichte $n_0(\mathbf{r})$ und -Energie E_0 gegeben. Dann hat das Energiefunktional

$$E_{\hat{V}_0}[n] = \langle \Psi[n] | \hat{T} + \hat{W} + \hat{V}_0 | \Psi[n] \rangle \quad (2.6)$$

gemäß Ritzschem Prinzip die Variationseigenschaften $E_{\hat{V}_0}[n_0] = E_0$, $E_{\hat{V}_0}[n] > E_0$ für $n \neq n_0$, und es gilt $E_0 = \min_{n \in \mathcal{N}} E_{\hat{V}_0}[n]$.

Aufgrund der Unabhängigkeit der Abbildung $\mathcal{D}^{-1}$ vom externen Potential des Systems wird $E_{\hat{V}_0}[n] = F_{\text{HK}}[n] + \int d\mathbf{r} V_0(\mathbf{r})n(\mathbf{r})$ als Summe des universellen HK-Funktional $F_{\text{HK}}[n] = \langle \Psi[n] | \hat{T} + \hat{W} | \Psi[n] \rangle$ und der potentiellen Energie formuliert. $F_{\text{HK}}[n]$ ist damit allein durch die interne Wechselwirkung festgelegt.

Entartete Grundzustände

In diesem Abschnitt umfasse $\mathcal{V}$ nun auch Potentiale $\hat{V}$, die zu entarteten GZen führen (vgl. Abbildung 2.1). $\psi_{\hat{V}} = \{|\Psi\rangle = \sum_j c_j |\Psi_j\rangle\}$ bezeichne den Unterraum der GZe von $\hat{V}$,

der von dem Orthonormalsystem $\{|\Psi_j\rangle\}$ aufgespannt werde. Dann gilt $\psi = \bigcup_{\hat{V} \in \mathcal{V}} \psi_{\hat{V}}$ und $\mathcal{N} = \bigcup_{\hat{V} \in \mathcal{V}} \mathcal{N}_{\hat{V}}$ mit $\mathcal{N}_{\hat{V}} = \{n(\mathbf{r}) = \langle \Psi | \hat{n}(\mathbf{r}) | \Psi \rangle : |\Psi\rangle \in \psi_{\hat{V}}\}$.

Im Vergleich zum nicht entarteten Fall sind dann die folgenden Modifikationen erforderlich:³³

Da ein Potential zu verschiedenen GZ-Wellenfunktionen führen kann, ist $\mathcal{C}$ keine Abbildung mehr.

Dagegen ist $\mathcal{D} : \psi \rightarrow \mathcal{N}$ nach wie vor eine wohldefinierte Abbildung. Außerdem gilt $n(\mathbf{r}) \neq n'(\mathbf{r})$ für die GZe $|\Psi\rangle$ und $|\Psi'\rangle$ zweier Potentiale $\hat{V}$ und $\hat{V}'$ ($\hat{V} \neq \hat{V}' + \text{const}$). Damit sind zwei Untermengen $\mathcal{N}_{\hat{V}}$ und $\mathcal{N}_{\hat{V}'}$ für $\hat{V} \neq \hat{V}' + \text{const}$ immer disjunkt, und es existiert die Abbildung $(\mathcal{C}\mathcal{D})^{-1} : \mathcal{N} \rightarrow \mathcal{V}$, $n(\mathbf{r}) \mapsto \hat{V}$.

Die Variationseigenschaften $E_{\hat{V}_0}[n_0] = E_0$, $E_{\hat{V}_0}[n] > E_0$ für $n \neq n_0$ und $E_0 = \min_{n \in \mathcal{N}} E_{\hat{V}_0}[n]$ des Energiefunktionals $E_{\hat{V}_0}[n]$ bleiben erhalten.

Allerdings gibt es kein eindeutiges Funktional $|\Psi[n]\rangle$ im entarteten Fall, da eine gegebene Dichte nicht eindeutig einer GZ-Wellenfunktion zugeordnet werden kann und $\mathcal{D}$ somit nicht invertierbar ist. Folglich wäre auch das Hohenberg-Kohn-Funktional $F_{\text{HK}}[n]$ nicht mehr eindeutig. Die Eindeutigkeit von $F_{\text{HK}}[n]$ kann jedoch durch eine Neudefinition über die GZ-Energie wiederhergestellt werden.³³

Repräsentabilität der Grundzustandsdichten

Die Funktionale $F_{\text{HK}}[n]$ und $E_{\hat{V}_0}[n]$ sind nach Konstruktion nur für „pure-state v -representable“ Dichten $n(\mathbf{r})$ definiert. Eine nicht-negative, normierte Funktion $n(\mathbf{r})$ heißt „pure-state v -representable“, falls sie die Dichte eines (möglicherweise entarteten) GZs eines Hamilton-Operators $\hat{H}$ bei fester Teilchenzahl N , fester Wechselwirkung $\hat{W}$ und passend gewähltem externem Potential $\hat{V}$ ist. Die Repräsentabilität der Grundzustandsdichten wird deshalb zum Problem, weil sich die Hoffnung von Hohenberg und Kohn, daß jede „vernünftige“ Dichte „pure-state v -representable“ sei, nicht bewahrheitete.³³ Somit ist bei der Implementierung des Variationsprinzips $E_0 = \min_{n \in \mathcal{N}} E_{\hat{V}_0}[n]$ sicherzustellen, daß alle Testdichten dieser Eigenschaft genügen. Diese Verfahrensweise ist allerdings äußerst unpraktikabel, was verschiedene Erweiterungen wie z.B. auf „ensemble v -representable“ Dichten³³ motivierte, um eine bessere mathematische Fundierung der DFT zu erreichen.

2.1.2 Kohn-Sham-Gleichungen

Das Variationsprinzip des HK-Theorems etabliert zwar die mathematische Grundlage, um die exakte GZ-Dichte und -Energie eines beliebigen wechselwirkenden Vielteilchen-Systems zu bestimmen. Aufgrund der Unkenntnis der meisten Funktionale ist allerdings eine explizite Berechnung nicht möglich. Erst die KS-Gleichungen erlauben durch eine Abbildung des wechselwirkenden Vielteilchen-Systems auf ein effektives Einteilchen-Problem eine Lösung im Rahmen einer Näherung.

Dazu betrachten wir das nicht-wechselwirkende Hilfssystem

$$\hat{H}_S = \hat{T} + \hat{V}_S. \quad (2.7)$$

Die zentrale Voraussetzung in der Ableitung des KS-Formalismus ist die Annahme, daß für jedes wechselwirkende System ein lokales Einteilchen-Potential $\hat{V}_S$ existiert,

so daß die GZ-Dichte $n(\mathbf{r})$ des wechselwirkenden Systems gleich der Dichte $n_s(\mathbf{r}) = n(\mathbf{r})$ des Hilfssystems ist. Die Gültigkeit der Annahme, daß jede wechselwirkend v -repräsentable Dichte auch nicht-wechselwirkend v -repräsentabel ist, wird als Arbeitshypothese für die vorliegende Arbeit vorausgesetzt, aber auch numerisch überprüft (vgl. Kapitel 6).

Ziel ist somit, für ein spezielles wechselwirkendes System mit externem Potential $\hat{V}_0$ und GZ-Dichte $n_0(\mathbf{r})$ ein Potential $\hat{V}_{s,0}$ des Hilfssystems zu bestimmen, das $n_0(\mathbf{r})$ reproduziert. Die KS-Wellenfunktionen $|\varphi_{j,0}\rangle$ und -Energien ε_j des Hilfssystems sind durch

$$\hat{H}_s|\varphi_{j,0}\rangle = (\hat{T} + \hat{V}_{s,0})|\varphi_{j,0}\rangle = \varepsilon_j|\varphi_{j,0}\rangle \quad (2.8)$$

gegeben. Mit den Besetzungszahlen $f_j = 1$ sind die N energetisch niedrigsten Zustände gekennzeichnet, für alle übrigen Zustände gilt $f_j = 0$ (die Quantenzahl j sei hier ein Multiindex für Orts- und Spinquantenzahl). Dann ist die GZ-Dichte des KS-Systems

$$n_{s,0}(\mathbf{r}) = \sum_j f_j |\varphi_{j,0}(\mathbf{r})|^2. \quad (2.9)$$

Die Anwendung des HK-Theorems auf ein System ohne Wechselwirkung $\hat{W} = 0$ definiert das (eindeutige) Funktional der kinetischen Energie $T_s[n]$.

Um das Einteilchen-Potential $\hat{V}_{s,0}$ zu berechnen, wird zunächst das XC-Funktional

$$E_{xc}[n] := F_{HK}[n] - \frac{1}{2} \int d\mathbf{r}' \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}') W(\mathbf{r}', \mathbf{r}) n(\mathbf{r}) - T_s[n] \quad (2.10)$$

definiert. Mit Hilfe von $E_{xc}[n]$ läßt sich das Energiefunktional (2.6) als Summe des Funktionals der kinetischen Energie (des nicht-wechselwirkenden Systems), der potentiellen Energie, der klassischen Coulomb-Abstoßung und des XC-Funktional formulieren

$$E_{\hat{V}_0}[n] = T_s[n] + \int d\mathbf{r} V_0(\mathbf{r}) n(\mathbf{r}) + \frac{1}{2} \int d\mathbf{r}' \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}') W(\mathbf{r}', \mathbf{r}) n(\mathbf{r}) + E_{xc}[n]. \quad (2.11)$$

Das Variationsprinzip $\delta E_{\hat{V}_0}[n] = 0$ liefert dann als Ergebnis das effektive KS-Potential und die Definition des Funktionals des XC-Potentials $V_{xc}([n], \mathbf{r})$

$$V_{s,0}(\mathbf{r}) = V_0(\mathbf{r}) + \int d\mathbf{r}' n(\mathbf{r}') W(\mathbf{r}', \mathbf{r}) + V_{xc}([n], \mathbf{r}) \quad (2.12)$$

$$V_{xc}([n], \mathbf{r}) = \frac{\delta E_{xc}[n]}{\delta n(\mathbf{r})}. \quad (2.13)$$

Die Gesamtenergie des GZs des wechselwirkenden Systems ist neben der GZ-Dichte ein weiteres Ergebnis des KS-Formalismus

$$E_0 = \sum_j f_j \varepsilon_j - \frac{1}{2} \int d\mathbf{r}' \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}') W(\mathbf{r}', \mathbf{r}) n(\mathbf{r}) - \int d\mathbf{r} V_{xc}([n], \mathbf{r}) n(\mathbf{r}) + E_{xc}[n]. \quad (2.14)$$

Zusammen stellen die drei Gleichungen (2.8), (2.9) und (2.12), die aufgrund ihrer gegenseitigen Abhängigkeit selbstkonsistent gelöst werden müssen, die KS-Gleichungen

der DFT dar. Insbesondere berücksichtigt der lokale(!) KS-Formalismus via $V_{\text{XC}}([n], \mathbf{r})$ neben Austauscheffekten auch Korrelationseffekte und ist im Falle der Gültigkeit unserer Arbeitshypothese sogar exakt, Näherungen sind nur aufgrund der Unkenntnis des exakten XC-Funktional erforderlich (vgl. Abschnitt 2.3). Im KS-Schema sind allein die GZ-Dichte und -Energie physikalisch relevant. Da die GZ-Wellenfunktion ein eindeutiges Funktional der GZ-Dichte ist, lassen sich alle GZ-Eigenschaften theoretisch (d.h. falls die entsprechenden Funktionale bekannt sind) berechnen. Im Gegensatz dazu haben die KS-Wellenfunktionen $|\varphi_{j,0}\rangle$ bzw. -Energien ε_j strenggenommen keine physikalische Bedeutung,³³ obwohl sie dennoch mit der nötigen Vorsicht zu physikalischen Interpretationen herangezogen werden. Ebenso wenig stimmen die Gesamtwellenfunktion oder die Einteilchen-Dichtematrizen des KS-Systems mit den entsprechenden Größen des wechselwirkenden Systems überein oder stellen Näherungen für diese dar.³³

2.1.3 Entartete Kohn-Sham-Grundzustände und die v -Repräsentabilität

Die Herleitung des KS-Formalismus beruht auf der zentralen Annahme, daß alle wechselwirkend v -repräsentablen Dichten auch nicht-wechselwirkend v -repräsentabel sind. Da eine detaillierte Diskussion den Rahmen der Arbeit sprengen würde, beschränken wir uns hier auf die wichtigsten Ergebnisse.³³

Die oben genannte Voraussetzung ist im nicht-entarteten Fall erfüllt: Für jede wechselwirkend v -repräsentable Dichte $n(\mathbf{r})$ existiert ein eindeutiges Einteilchen-Potential $\hat{V}_S$, so daß die Dichte $n(\mathbf{r})$ mit der GZ-Dichte $n_S(\mathbf{r})$ des KS-Systems übereinstimmt.

Im Falle von q entarteten GZen $|\phi_k\rangle$ ($k = 1, \dots, q$) des KS-Systems ($|\phi_k\rangle$ ist hier eine Slater-Determinante)

$$\hat{H}_S |\phi_k\rangle = E_{\text{GZ}} |\phi_k\rangle \quad (2.15)$$

muß dagegen die GZ-Dichte mit Hilfe der Dichtematrix $\hat{D}_S = \sum_{k=1}^q d_k |\phi_k\rangle \langle \phi_k|$ (mit $\sum_{k=1}^q d_k = 1$) berechnet werden

$$n_S = \text{tr}\{\hat{D}_S \hat{n}(\mathbf{r})\}. \quad (2.16)$$

Dies wiederum hat Konsequenzen für das KS-Schema. Statt wie im nicht-entarteten Fall mit eindeutig definierten Besetzungszahlen $f_j \in \{0, 1\}$ zu arbeiten, müssen für die Berechnung der GZ-Dichte jetzt fraktionale Besetzungszahlen $f_j \in [0, 1]$ an der Fermi-Kante, d.h. für die höchsten besetzten Zustände, zugelassen werden. (Natürlich gilt weiterhin $\sum_j f_j = N$.) Dabei existiert aber keine Vorschrift, wie die f_j zu wählen sind.

2.2 Spin- und Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie

In diesem Abschnitt werden die Erweiterungen der DFT, die Spin-DFT (SDFT)^{9,133} und die Strom-Spin-DFT (CSDFT)^{163,164} vorgestellt. Die Notation orientiert sich an der CSDFT, die die Kopplung eines externen Magnetfeldes sowohl an die Spindichte als auch an die orbitale Stromdichte berücksichtigt. Formal erhält man die SDFT aus der

CSDFT, indem das XC-Vektorpotential Null gesetzt wird, was auch die Abhängigkeit von der paramagnetischen Stromdichte eliminiert. Mit Hilfe der SDFT bzw. CSDFT ist nun auch die Beschreibung von spin-polarisierten bzw. teilweise spin-polarisierten Zuständen möglich, wie sie für Systeme im Magnetfeld, aber auch im Kontext der Hundschen Regel bei $B = 0$ auftreten (für Quantendots vgl. z.B. Koskinen et al. (1997⁸⁶), Steffens et al. (1998¹⁴⁹), Steffens (1999¹⁴⁸)).

2.2.1 Hohenberg-Kohn-Theorem

Ausgehend von der ursprünglichen Formulierung der DFT würde das HK-Funktional $E_{\text{HK}}[n]$ in Gegenwart eines externen Vektorpotentials A parametrisch von A abhängen, da der Operator der kinetischen Energie $\hat{T}(A) = \frac{1}{2m^*} \sum_{\sigma} \int d\mathbf{r} \hat{\psi}_{\sigma}^{\dagger}(\mathbf{r}) \left[\frac{\hbar}{i} \nabla + eA(\mathbf{r}) \right]^2 \hat{\psi}_{\sigma}(\mathbf{r})$ eine Funktion von A ist.

Im Gegensatz dazu schlagen Vignale & Rasolt (1988¹⁶⁴) folgende Form des Hamilton-Operators mit Magnetfeld

$$\hat{H} = \hat{T} + \hat{W} + \sum_{\sigma} \int d\mathbf{r} V_{\sigma}(\mathbf{r}) \hat{n}_{\sigma}(\mathbf{r}) + e \int d\mathbf{r} \hat{j}_{\text{p}}(\mathbf{r}) \cdot A(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{2m} \sum_{\sigma} \int d\mathbf{r} \hat{n}_{\sigma}(\mathbf{r}) A^2(\mathbf{r}) \quad (2.17)$$

als Ausgangspunkt vor (mit $\hat{T}$ wie in Gleichung (2.2)). Der Operator der paramagnetischen Stromdichte lautet

$$\hat{j}_{\text{p}}(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{2mi} \sum_{\sigma} \left\{ \hat{\psi}_{\sigma}^{\dagger}(\mathbf{r}) \nabla \hat{\psi}_{\sigma}(\mathbf{r}) - [\nabla \hat{\psi}_{\sigma}^{\dagger}(\mathbf{r})] \hat{\psi}_{\sigma}(\mathbf{r}) \right\}. \quad (2.18)$$

Das externe Potential $V_{\sigma}(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}) - g\mu_{\text{B}}B(\mathbf{r})\sigma/2$ ist eine Summe aus dem skalaren Potential $V(\mathbf{r})$ sowie der Zeeman-Energie (1.2), die die Ankopplung des Magnetfeldes an die Spindichte beschreibt. (Wir setzten hier ein unidirektionales Magnetfeld voraus, das auch die Quantisierungsrichtung für den Spin festlegt. Vignale & Rasolt (1988¹⁶⁴) behandeln den allgemeinen Fall.)

In Anlehnung an die ursprüngliche DFT formulieren Vignale & Rasolt (1988¹⁶⁴) ein verallgemeinertes Hohenberg-Kohn-Theorem für die Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie. Wie zuvor werden für Potentialtupel $(\hat{V}_{\sigma}, \hat{A})$, die zu nicht-entarteten GZen $|\Psi\rangle$ führen, die (surjektiven) Abbildungen $\mathcal{C} : \mathcal{V} \rightarrow \psi$, $(\hat{V}_{\sigma}, \hat{A}) \mapsto |\Psi\rangle$ und $\mathcal{D} : \psi \rightarrow \mathcal{N}$, $|\Psi\rangle \mapsto (n_{\sigma}(\mathbf{r}), j_{\text{p}}(\mathbf{r}))$ konstruiert ($\mathcal{V}$ und $\mathcal{N}$ sind jetzt im Gegensatz zu vorher Produkträume).

Die Kernaussage des verallgemeinerten HK-Theorems^{163,164} ist die Umkehrbarkeit der Abbildung $\mathcal{D} : \psi \rightarrow \mathcal{N}$, $|\Psi\rangle \mapsto (n_{\sigma}(\mathbf{r}), j_{\text{p}}(\mathbf{r}))$, d.h. zwei verschiedene, nicht entartete GZe $|\Psi\rangle$ und $|\Psi'\rangle$ gehören immer zu zwei verschiedenen Tupeln $(n_{\sigma}(\mathbf{r}), j_{\text{p}}(\mathbf{r})) \neq (n'_{\sigma}(\mathbf{r}), j'_{\text{p}}(\mathbf{r}))$. Dies ist ausreichend,³³ um ein Funktional der Gesamtenergie

$$\begin{aligned} E_{\hat{V}_{\sigma}, \hat{A}}[n_{\sigma}, j_{\text{p}}] &= E_{\text{HK}}[n_{\sigma}, j_{\text{p}}] + \sum_{\sigma} \int d\mathbf{r} n_{\sigma}(\mathbf{r}) V_{\sigma}(\mathbf{r}) \\ &\quad + e \int d\mathbf{r} j_{\text{p}}(\mathbf{r}) \cdot A(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{2m} \sum_{\sigma} \int d\mathbf{r} n_{\sigma}(\mathbf{r}) A^2(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (2.19)$$

aufzustellen. $E_{\text{HK}}[n_\sigma, j_p] = \langle \Psi[n_\sigma, j_p] | \hat{T} + \hat{W} | \Psi[n_\sigma, j_p] \rangle$ ist das universelle HK-Funktional, das insbesondere unabhängig vom externen Vektorpotential ist. Die v -Repräsentabilität vorausgesetzt, gelten für ein vorgegebenes Potentialtupel $(\hat{V}_{\sigma,0}, \hat{A}_0)$, das zu der GZ-Dichte $(n_{\sigma,0}, j_{p,0})$ führt, die üblichen Variationseigenschaften $E_{\hat{V}_{\sigma,0}, \hat{A}_0}[n_{\sigma,0}, j_{p,0}] = E_0$, $E_{\hat{V}_{\sigma,0}, \hat{A}_0}[n_\sigma, j_p] > E_0$ für $(n_\sigma, j_p) \neq (n_{\sigma,0}, j_{p,0})$ und $E_0 = \min_{(n_\sigma, j_p) \in \mathcal{N}} E_{\hat{V}_{\sigma,0}, \hat{A}_0}[n_\sigma, j_p]$. (Potentiale $\{\hat{V}_\sigma\}$ und $\{\hat{V}'_\sigma\}$ mit $V_\sigma(\mathbf{r}) = V'_\sigma(\mathbf{r}) + \text{const}$ werden nicht unterschieden.)

Im Gegensatz zu $\mathcal{D}$ ist die Abbildung $\mathcal{C}$ nicht umkehrbar. Für das einfache Hohenberg-Kohn-Theorem folgt aus der Annahme $|\Psi\rangle = |\Psi'\rangle$ sofort der Widerspruch $(H - H')|\Psi\rangle = (E - E')|\Psi\rangle \Rightarrow V(\mathbf{r}) - V'(\mathbf{r}) = E - E' = \text{const}$, was die Injektivität von $\mathcal{C}$ beweist. Im Falle der SDFT bzw. CSDFT läßt sich der Schluß aufgrund von $\hat{V}_\sigma$ bzw. $\hat{V}'_\sigma$ und $\hat{A}$ nicht übertragen. Erste konstruierte Gegenbeispiele⁹ werden in der Literatur (z.B. Rajagopal (1980¹³²)) durchaus kritisch diskutiert. Neuere Arbeiten (Capelle & Vignale (2001¹⁸), Capelle & Vignale (2002¹⁹)) zeigen jedoch klar eine Verletzung der Injektivität, die auch im Fall von parabolischen Quantendots vorliegt, wie wir in Abschnitt 5.1 zeigen werden. Diese Problematik spielt aber, wie schon erwähnt, zumindest für die Definition des Energiefunktionals keine Rolle.³³

Neben den bereits diskutierten Beiträgen zum Hamiltonian kann auch ein Spin-Bahn-Kopplungsterm berücksichtigt werden. Der Formalismus der CSDFT wird in dieser Hinsicht in der Arbeit von Vignale & Rasolt (1988¹⁶⁴) verallgemeinert. Ein anderer interessanter Aspekt des Formalismus der DFT ist die Tatsache, daß in der vorliegenden Notation $A(\mathbf{r})$ und $B(\mathbf{r})$ als unabhängige Größen zu betrachten sind, d.h. auf die (physikalische) Relation $B(\mathbf{r}) = \nabla \times A(\mathbf{r})$ wird verzichtet. Setzt man allerdings $B(\mathbf{r}) = \nabla \times A(\mathbf{r})$ voraus, so zeigen Capelle & Gross (1997¹⁷), daß das System schon allein durch die unabhängigen Größen GZ-Dichte und Summe aus paramagnetischer Stromdichte und Spinstromdichte beschrieben wird.

2.2.2 Kohn-Sham-Formalismus

Analog zur ursprünglichen Formulierung der DFT wird unter der Voraussetzung, daß jedes wechselwirkend v -repräsentable Dichtetupel (n_σ, j_p) auch nicht-wechselwirkend v -repräsentabel ist (in Form einer einzigen Slater-Determinante oder ensemble-repräsentabel⁹⁶), ein KS-Hilfssystem definiert, das für ein gegebenes Potentialtupel $(\hat{V}_{\sigma,0}, \hat{A}_0)$ die GZ-Dichten des wechselwirkenden Systems $(n_{\sigma,0}, j_{p,0})$ reproduziert. Die GZ-Dichten der KS-Schrödinger-Gleichung

$$\hat{H}_{S,\sigma} \varphi_{j\sigma}(\mathbf{r}) = \left[\frac{1}{2m^*} (\mathbf{p} + e\mathbf{A}_S(\mathbf{r}))^2 + V_{S,\sigma}(\mathbf{r}) \right] \varphi_{j\sigma}(\mathbf{r}) = \varepsilon_{j\sigma} \varphi_{j\sigma}(\mathbf{r}) \quad (2.20)$$

lauten

$$n_{S,0,\sigma}(\mathbf{r}) = \sum_j f_{j\sigma} |\varphi_{j\sigma}(\mathbf{r})|^2 \quad (2.21)$$

$$j_{p,S,0}(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{2mi} \sum_{j,\sigma} f_{j\sigma} \left\{ \varphi_{j\sigma}^*(\mathbf{r}) \nabla \varphi_{j\sigma}(\mathbf{r}) - [\nabla \varphi_{j\sigma}^*(\mathbf{r})] \varphi_{j\sigma}(\mathbf{r}) \right\}. \quad (2.22)$$

Die Besetzungszahlen $f_{j\sigma}$ definieren die energetisch niedrigsten besetzten Zustände des KS-Systems.

Das Funktional der kinetischen Energie des nicht-wechselwirkenden Systems $T_S[n_\sigma, j_p]$ ist durch Anwendung des HK-Theorems auf das KS-System eindeutig definiert. Analog zu vorher läßt sich das Energiefunktional (2.19) mit Hilfe des XC-Funktionalen

$$E_{XC}[n_\sigma, j_p] := F_{HK}[n_\sigma, j_p] - \frac{1}{2} \int d\mathbf{r}' \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}') W(\mathbf{r}', \mathbf{r}) n(\mathbf{r}) - T_S[n_\sigma, j_p] \quad (2.23)$$

umschreiben zu

$$\begin{aligned} E_{\hat{V}_\sigma, \hat{A}}[n_\sigma, j_p] = & T_S[n_\sigma, j_p] + \frac{1}{2} \int d\mathbf{r}' \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}') W(\mathbf{r}', \mathbf{r}) n(\mathbf{r}) + \sum_\sigma \int d\mathbf{r} n_\sigma(\mathbf{r}) V_\sigma(\mathbf{r}) \\ & + e \int d\mathbf{r} j_p(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{2m} \sum_\sigma \int d\mathbf{r} n_\sigma(\mathbf{r}) A^2(\mathbf{r}) + E_{XC}[n_\sigma, j_p] \end{aligned} \quad (2.24)$$

Aus dem Variationsprinzip $\delta E_{\hat{V}_\sigma, \hat{A}}[n_\sigma, j_p] = 0$ lassen sich die effektiven Einteilchen-Potentiale

$$V_{S,\sigma}(\mathbf{r}) = V_\sigma(\mathbf{r}) + V_H(\mathbf{r}) + V_{XC\sigma}(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{2m^*} (A^2(\mathbf{r}) - A_S^2(\mathbf{r})) \quad (2.25)$$

$$A_S(\mathbf{r}) = \mathbf{A}(\mathbf{r}) + \mathbf{A}_{XC}(\mathbf{r}) \quad (2.26)$$

berechnen. Die selbstkonsistenten Potentiale (Hartree-Potential $V_H(\mathbf{r})$, XC-Potential $V_{XC\sigma}(\mathbf{r})$ und XC-Vektorpotential $\mathbf{A}_{XC}(\mathbf{r})$) sind definiert durch

$$V_H(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \int d\mathbf{r}' n(\mathbf{r}') W(\mathbf{r}', \mathbf{r}) \quad (2.27)$$

$$V_{XC\sigma}(\mathbf{r}) := V_{XC\sigma}[n_\sigma, j_p](\mathbf{r}) = \left. \frac{\delta E_{XC}[n_\sigma, j_p]}{\delta n_\sigma(\mathbf{r})} \right|_{n_\sigma, j_p} \quad (2.28)$$

$$e\mathbf{A}_{XC}(\mathbf{r}) := e\mathbf{A}_{XC}[n_\sigma, j_p](\mathbf{r}) = \left. \frac{\delta E_{XC}[n_\sigma, j_p]}{\delta \mathbf{j}_p(\mathbf{r})} \right|_{\{n_\sigma\}}. \quad (2.29)$$

Die KS-Schrödinger-Gleichung

$$\begin{aligned} & \left[\frac{1}{2m^*} \left\{ \hbar \frac{\nabla}{i} + e[\mathbf{A}(\mathbf{r}) + \mathbf{A}_{XC}(\mathbf{r})] \right\}^2 + \frac{e^2}{2m^*} \left\{ A^2(\mathbf{r}) - [\mathbf{A}(\mathbf{r}) + \mathbf{A}_{XC}(\mathbf{r})]^2 \right\} \right. \\ & \quad \left. + V_\sigma(\mathbf{r}) + V_H(\mathbf{r}) + V_{XC\sigma}(\mathbf{r}) \right] \varphi_{j\sigma}(\mathbf{r}) = \varepsilon_{j\sigma} \varphi_{j\sigma}(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (2.30)$$

stellt zusammen mit den Gleichungen (2.21), (2.22) die Verallgemeinerung der KS-Gleichungen⁸² dar. Es ist insbesondere bemerkenswert, daß $A_S = A + A_{XC}$ in die KS-Gleichung nur linear eingeht.

Die Grundzustandsenergie des wechselwirkenden Systems ist somit gegeben durch

$$\begin{aligned} E = & \sum_{j\sigma} f_{j\sigma} \varepsilon_{j\sigma} - \frac{1}{2} \int d\mathbf{r} V_H(\mathbf{r}) n(\mathbf{r}) \\ & - \sum_\sigma \int d\mathbf{r} n_\sigma(\mathbf{r}) V_{XC\sigma}(\mathbf{r}) - e \int d\mathbf{r} j_p(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}_{XC}(\mathbf{r}) + E_{XC}[n_\sigma, j_p]. \end{aligned} \quad (2.31)$$

2.2.3 Eichinvarianz

Aus der Konstruktion der Abbildungen $\mathcal{C}$ und $\mathcal{D}$ im Zuge des HK-Theorems für Systeme im Magnetfeld wird die Relevanz der paramagnetischen Stromdichte j_p offensichtlich. Während die physikalische Stromdichte $j(r)$ unter einer Eichtransformation des Vektorpotentials $A(r) \rightarrow A(r) - \nabla\Lambda(r)$ mit einer beliebigen skalaren Funktion Λ invariant bleibt, modifiziert sich $j_p(r)$ gemäß Definition zu $j_p(r) + \frac{e}{m^*}n(r)\nabla\Lambda(r)$. Bei Verwendung der physikalischen Stromdichte $j(r)$ würde eine ganze Klasse von Potentialtupeln und GZ-Wellenfunktionen auftreten, die sich nur um eine Eichtransformation unterscheiden, aber zu gleichen GZ-Dichten führen. Dies würde die Injektivität der Abbildung $\mathcal{D}$ verletzen.[†]

Die Eichinvarianz der CSDFT überprüfen Vignale & Rasolt (1988¹⁶⁴), indem sie die Eigenschaften aller Funktionale unter der Transformation $j_p(r) \rightarrow j_p(r) + \frac{e}{m^*}n(r)\nabla\Lambda(r)$ untersuchen. Für die Vielteilchen-Wellenfunktionen ist damit die folgende Phasenänderung verbunden

$$\Psi[n_\sigma, j_p + \frac{e}{m^*}n\nabla\Lambda](\{r_i\}) = \exp\left[\frac{ie}{\hbar}\sum_{i=1}^N\Lambda(r_i)\right]\Psi[n_\sigma, j_p](\{r_i\}). \quad (2.32)$$

Aus dem Transformationsverhalten des HK-Funktional schließen Vignale & Rasolt (1988¹⁶⁴) auf das des XC-Funktional

$$E_{XC}[n_\sigma, j_p + \frac{e}{m^*}n\nabla\Lambda] = E_{XC}[n_\sigma, j_p]. \quad (2.33)$$

Diese Gleichung ist der Ausgangspunkt für einen Beweis der Eichinvarianz der CSDFT. Ein weiterer entscheidender Punkt ist die Beobachtung, daß das Austausch-Korrelations-Funktional nicht explizit von j_p abhängt, sondern nur über die sog. Vortizität $v(r) = \nabla \times (j_p(r)/n(r))$. Somit liegt die Definition eines neuen Funktional

$$\tilde{E}_{XC}[n_\sigma, v] := E_{XC}[n_\sigma, j_p] \quad (2.34)$$

nahe, wobei auf die Tilde über $\tilde{E}_{XC}$ in den folgenden Kapiteln verzichtet wird. Aufgrund der geänderten funktionalen Abhängigkeit gilt für die XC-Potentiale¹⁴⁸ (2.28), (2.29)

$$eA_{XC}(r) = \left.\frac{\delta E_{XC}}{\delta j_p(r)}\right|_{\{n_\sigma\}} = \frac{1}{n(r)}\nabla \times \left.\frac{\delta \tilde{E}_{XC}}{\delta v(r)}\right|_{\{n_\sigma\}} \quad (2.35)$$

$$V_{XC\sigma}(r) = \left.\frac{\delta E_{XC}}{\delta n_\sigma(r)}\right|_{n_\sigma, v} = \left.\frac{\delta \tilde{E}_{XC}}{\delta n_\sigma(r)}\right|_{n_\sigma, v} - eA_{XC}(r)\frac{j_p(r)}{n(r)}. \quad (2.36)$$

[†]Allerdings existiert auch eine auf Diener (1991³¹) zurückgehende Formulierung der CSDFT, der statt der paramagnetischen Stromdichte $j_p(r)$ die physikalische Stromdichte $j(r)$ zugrunde liegt und die Potentiale, die sich nur um eine Eichtransformation unterscheiden, als äquivalent betrachtet. Dieser Ansatz eignet sich allerdings weniger für lokale Näherungen, da nicht-lokale Effekte der Stromdichte ausgesprochen wichtig werden.¹⁶²

2.3 Lokale Dichtenäherungen

Durch die Abbildung auf ein effektives Einteilchen-Problem mit Hilfe der KS-Gleichungen kommt das XC-Funktional $E_{\text{XC}}[n_\sigma, v]$ ins Spiel, das alle Austausch- und Korrelationseffekte des wechselwirkenden Systems umfaßt. In Hinblick auf die praktische Durchführung von DFT-Rechnungen ist eine zuverlässige Approximation für diese Größe unerlässlich. Der am weitesten verbreitete Ansatz ist die lokale Dichtenäherung (LDA). Dazu zerlegt man das inhomogene System in Subsysteme gleicher Dichte und nimmt an, daß die XC-Energie der Subsysteme durch die XC-Energie eines homogenen Systems gleicher Dichte beschrieben werden kann³³

$$E_{\text{XC}}[n] \approx \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}) \varepsilon_{\text{XC}}(n(\mathbf{r})). \quad (2.37)$$

$\varepsilon_{\text{XC}}(n)$ ist die Austausch-Korrelations-Energie pro Teilchen eines homogenen Systems mit der vorgegebenen Dichte n .

Der Gültigkeitsbereich der LDA sollte gemäß ihrer Definition auf inhomogene Systeme beschränkt sein, deren GZ-Dichte nur schwach auf der Längenskala der Vielteilchen-Korrelationen variiert. Erfahrungsgemäß geht das Anwendungsspektrum dieser Näherung aber weit darüber hinaus. So zeigen Dreizler & Gross (1990³³) mit Hilfe der Technik der Integration der Kopplungskonstanten, daß das XC-Loch in der DFT nicht ein entsprechendes Gegenstück zum echten XC-Loch sein muß. Es ist vielmehr ausreichend, daß das sphärische Mittel des echten XC-Lochs durch das der DFT adäquat beschrieben wird.^{33,51}

Für die Verallgemeinerung der LDA zur lokalen Vortizitäts-Spin-Dichtenäherung (LVSDA) innerhalb der CSDFT (Vignale et al. (1990¹⁶⁵)) ist eine spin- und vortizitätsabhängige Beschreibung der Austausch-Korrelations-Energie notwendig

$$E_{\text{XC}}[n_\sigma, v] \approx \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}) \varepsilon_{\text{XC}}(n_\sigma(\mathbf{r}), v(\mathbf{r})). \quad (2.38)$$

Dagegen ist eine lokale Näherung unter Verwendung der paramagnetischen Stromdichte $j_p(\mathbf{r})$ statt $v(\mathbf{r})$ wenig hilfreich, da das entsprechende homogene Referenzsystem aufgrund der Translationsinvarianz Vortizität Null aufweist.¹⁶⁴ Der Zusammenhang zum homogenen Referenzsystem wird wie folgt konstruiert: Aus der Stromerhaltung und der Translationsinvarianz für ein abgeschlossenes homogenes System folgt für die physikalische Stromdichte $j_{\text{hom}} = 0$. Dann gilt für die paramagnetische Stromdichte

$$j_{p\text{hom}}(\mathbf{r}) = -\frac{e}{m^*} n(\mathbf{r}) A_{\text{hom}}(\mathbf{r}) \quad (2.39)$$

und für das Magnetfeld des homogenen Systems

$$\mathbf{B}_{\text{hom}} = \nabla \times \mathbf{A}_{\text{hom}}(\mathbf{r}) = -\frac{m^*}{e} \nabla \times \frac{j_{p\text{hom}}(\mathbf{r})}{n(\mathbf{r})} = -\frac{m^*}{e} \mathbf{v} = \text{const.} \quad (2.40)$$

Somit ist das Magnetfeld $\mathbf{B}_{\text{hom}}$ des homogenen Referenzsystems durch die Vortizität des inhomogenen Systems festgelegt. Beschränkt man sich dagegen auf die Abhängigkeit des XC-Funktional von den Spindichten n_σ und vernachlässigt die Vortizitäts-

abhängigkeit, so reduziert sich die CSDFT zur SDFT und die LVSDA zur lokalen Spin-Dichtenäherung (LSDA)⁹

$$E_{\text{XC}}[n_\sigma] \approx \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}) \varepsilon_{\text{XC}}(n_\sigma(\mathbf{r})). \quad (2.41)$$

Wie schon in Abschnitt 2.2.1 erwähnt, ist die Abhängigkeit des XC-Funktionalen aufgrund der Beziehung $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$ für reale Felder redundant, d.h. E_{XC} hängt nur von der Dichte und der Summe aus paramagnetischen Stromdichten und Spinstromdichten ab bzw. aufgrund der Eichinvarianz von der Dichte und der Rotation der Summe der Stromdichten über der Dichte. Für ein homogenes System folgern Capelle & Gross (1997¹⁷), daß die Spinstromdichte konstant und somit E_{XC} nur ein Funktional von n und v ist. Dies bedeutet mit anderen Worten, daß das (fiktive) Magnetfeld $\mathbf{B}_{\text{hom}}$ auch die Spinaufspaltung des homogenen Systems festlegt.

2.4 Austausch-Korrelation homogener zweidimensionaler Systeme

Der Schwerpunkt der Untersuchungen von XC-Energien homogener Systeme liegt zweifelsohne bei dreidimensionalen Systemen. Ein Überblick über die wichtigsten Arbeiten findet sich z.B. bei Dreizler & Gross (1990³³). Erst mit der wachsenden Bedeutung von nieder-dimensionalen Systemen speziell in der Halbleiterphysik fanden auch zweidimensionale Systeme zunehmende Beachtung. Dennoch ist die Zahl der Arbeiten erheblich geringer als für den dreidimensionalen Fall, insbesondere fehlen Ansätze zu Gradientenkorrekturen in 2D. Es folgt eine Zusammenfassung von Parametrisierungen für 2D-XC-Energien. Die zugrunde liegenden Methoden orientieren sich häufig an den 3D-Problemen.

2.4.1 Austausch-Korrelations-Energiedichten in lokaler Spin-Dichtenäherung

Für 2D- bzw. Quasi-2D-Systeme erweist sich die Random-Phase-Approximation (RPA)¹²⁸ als schlechtere Näherung als für 3D.⁷² Dies trifft auch für die zuverlässigere STLS-Approximation¹⁴⁷ zu. Insbesondere sind die Abweichungen zwischen RPA und STLS für Quasi-2DEGs nur gering, da aufgrund der abgeschwächten kurzreichweitigen Coulomb-Wechselwirkung Korrelationen für diese Systeme an Bedeutung verlieren.⁷² Eine neuere Arbeit zu XC-Energien für Quasi-2DEGs wurde von Betbeder-Matibet et al. (1996¹⁰) veröffentlicht.

Das Konzept der Ring-Diagramm-Summation⁴⁷ übertrugen Rajagopal & Kimball (1977¹³⁴) auf den 2D-Fall. Der Ausdruck für die Gesamtenergie pro Teilchen eines 2DEG als Funktion des dimensionslosen Dichteparameters $r_s = 1/(\sqrt{\pi n} a_0)$ und der Polarisation $\xi = (n_\uparrow - n_\downarrow)/n$ ist

$$\varepsilon_{\text{tot}}/\text{Ry} = \frac{1}{r_s^2}(1 + \xi^2) - \frac{4\sqrt{2}}{3\pi r_s} \left[(1 + \xi)^{3/2} + (1 - \xi)^{3/2} \right] + [E_x^{(2)} + E_c^r(r_s, \xi)]/N. \quad (2.42)$$

Dabei beschreibt der erste Term die kinetische Energie der nicht wechselwirkenden Teilchen, der zweite den Hartree-Fock-Beitrag und der dritte, konstante Term $E_x^{(2)}$ einen

	a_0	a_1	a_2	a_3
$\xi = 0$	-0.3568	1.1300	0.9052	0.4165
$\xi = 1$	-0.0515	340.5813	75.2293	37.0170

TABELLE I: Parameter der Padé-Approximation (2.44) für ein unpolarisiertes ($\xi = 0$) und ein vollständig polarisiertes ($\xi = 1$) 2D-Elektronengas.¹⁵³

Austausch-Beitrag. E_c^r setzt sich aus der Summation aller Ring-Diagramme⁴⁷ zusammen und stellt eine Korrektur des Korrelationsanteils dar. Für den Spezialfall $\xi = 0$ liefert die Methode

$$\varepsilon_{\text{tot}}/\text{Ry} = \frac{1}{r_s^2} - \frac{1.20}{r_s} - 0.38 - 0.172 r_s \log r_s + O(r_s). \quad (2.43)$$

Im Gegensatz zum 3D Fall tritt der Term mit dem Logarithmus in einem Produkt mit r_s auf. Somit gewinnen die konstanten Beiträge aus der zweiten Ordnung der direkten Coulomb-Wechselwirkung sowie diejenigen aus dem Austauschterm $E_x^{(2)}$ im Grenzfall $r_s \rightarrow 0$ an Relevanz. Nach Berücksichtigung weiterer Austausch-Graphen zweiter Ordnung erhalten Isihara & Ioratti (1980⁶⁸) einen verbesserten Wert von -0.2287 für $E_x^{(2)}$.

Tanatar & Ceperley (1989¹⁵³) (TC) berechneten XC-Energien numerisch unter Verwendung von Variational Monte Carlo und Fixed-Node Green's-Function Monte Carlo. Für die r_s -Werte 1, 5, 10, 15, 20 etc. liegen die Ergebnisse in parametrisierter Form vor

$$\varepsilon_c^{\text{TC}}(r_s, \xi)/\text{Ry} = a_0 \frac{1 + a_1 x}{1 + a_1 x + a_2 x^2 + a_3 x^3} \quad (\text{mit } x = r_s^{1/2}). \quad (2.44)$$

In Tabelle I sind die gefitteten Parameter der Padé-Approximation zusammengefaßt. Für $r_s \rightarrow 0$ ist das asymptotische Verhalten durch $a_0 [1 + b r_s + O(r_s^{3/2})]$ gekennzeichnet, wobei der Term $r_s \ln r_s$ aus Gleichung (2.43) unberücksichtigt bleibt. Die Polarisationsabhängigkeit der XC-Energie wird analog zum 3D Fall⁹ mit Hilfe der Interpolationsformel für die Austauschenergie $f(\xi) = [(1 + \xi)^{3/2} + (1 - \xi)^{3/2} - 2^{3/2}] / (2 - 2^{3/2})$ konstruiert

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\text{XC}}^{\text{TC}}(r_s, \xi)/\text{Ry} = & -\frac{4\sqrt{2}}{3\pi r_s} \left[(1 + \xi)^{3/2} + (1 - \xi)^{3/2} \right] + \varepsilon_c^{\text{TC}}(r_s, \xi = 1)/\text{Ry} \\ & + [\varepsilon_c^{\text{TC}}(r_s, \xi = 0) - \varepsilon_c^{\text{TC}}(r_s, \xi = 1)] f(\xi)/\text{Ry}. \end{aligned} \quad (2.45)$$

Einen ähnlichen Ansatz verfolgen Attaccalite, Moroni, Gori-Giorgi & Bachalet (2002⁷) (AMBG). Sie berechnen die GZ-Energie eines 2DEG als Funktion von r_s und ξ mit Fixed-Node Diffusion Monte Carlo-Methoden, wobei auch Back-Flow-Korrelationen⁷ berücksichtigt werden. Ihre Parametrisierung der XC-Energie

$$\varepsilon_{\text{XC}}^{\text{AMGB}}(r_s, \xi)/\text{Ry} = \varepsilon_x(r_s, \xi)/\text{Ry} + \varepsilon_c(r_s, \xi)/\text{Ry} \quad (2.46)$$

setzt sich zusammen aus dem aus der Ring-Diagramm-Methode bekannten Resultat für den Austauschanteil

$$\varepsilon_x(r_s, \xi)/\text{Ry} = -\frac{4\sqrt{2}}{3\pi r_s} \left[(1 + \xi)^{3/2} + (1 - \xi)^{3/2} \right] \quad (2.47)$$

	$i = 0$	$i = 1$	$i = 2$
A_i	-0.1925*	0.117331*	0.0234188*
B_i	0.0863136*	-3.394×10^{-2}	-0.037093
C_i	0.057234	-7.66765×10^{-3} *	0.0163618*
E_i	1.0022	0.4133	1.424301
F_i	-0.02069	0*	0*
G_i	0.340	6.68467×10^{-2}	0*
H_i	1.747×10^{-2}	7.799×10^{-4}	1.163099

TABELLE II: Parameter der Interpolation (2.48), (2.50) für ein 2D-Elektronengas.⁷ Mit * versehene Werte wurden aus exakten Bedingungen berechnet. Der Parameter $D_i = -A_i H_i$ ist nicht aufgeführt, $\beta = 1.3386$.

und dem Korrelationsanteil

$$\varepsilon_C(r_s, \xi)/\text{Ry} = (e^{-\beta r_s} - 1) \varepsilon_X^{(6)}(r_s, \xi)/\text{Ry} + 2\alpha_0(r_s) + 2\alpha_1(r_s)\xi^2 + 2\alpha_2(r_s)\xi^4, \quad (2.48)$$

wobei

$$\varepsilon_X^{(6)}(r_s, \xi) = \varepsilon_X(r_s, \xi) - \left(1 + \frac{3}{8}\xi^2 + \frac{3}{128}\xi^4\right) \varepsilon_X(r_s, 0) \quad (2.49)$$

die Taylor-Entwicklung der Austauschenergie nach ξ der Ordnung 6 und höher ist. Diese Art der Darstellung der XC-Energie erlaubt Attaccalite, Moroni, Gori-Giorgi & Bachalet die Identifizierung des Terms $2\alpha_0(r_s)$ mit der Korrelationsenergie $\varepsilon_C(r_s, 0)$ und des Terms $2\alpha_1(r_s)$ mit der Spinsteifigkeit. Für die Parametrisierung der $\alpha_i(r_s)$ wählen die Autoren die Verallgemeinerung der Perdew-Wang-Form¹²⁵ für den 2D-Fall

$$\alpha_i(r_s) = A_i + (B_i r_s + C_i r_s^2 + D_i r_s^3) \log \left(1 + \frac{1}{E_i r_s + F_i r_s^{3/2} + G_i r_s^2 + H_i r_s^3} \right). \quad (2.50)$$

Die an die numerischen Ergebnisse angepaßten Parameter sind in Tabelle II zusammengefaßt.

Einen rein analytischen Zugang wählt Seidl (2001¹⁴⁵) auf Grundlage der Interaction-strength-Interpolation (ISI) und der Behandlung der Grenzfälle eines schwach und stark wechselwirkenden 2DEGs. Das Ergebnis für die XC-Energie lautet

$$\begin{aligned} \varepsilon_{XC}(r_s, \xi)/\text{Ry} = & 2\frac{a_\infty}{r_s} + 4\frac{X(r_s, \xi)}{Y(r_s, \xi)} \times \\ & \times \left[(1 + Y(r_s, \xi))^{1/2} - 1 - Z(\xi) \log \frac{(1 + Y(r_s, \xi))^{1/2} + Z(\xi)}{1 + Z(\xi)} \right]. \end{aligned} \quad (2.51)$$

Die in die Interpolation eingehenden Funktionen und Parameter sind durch

$$X(r_s, \xi) = \frac{-b_0(\xi)}{r_s [c_x(\xi) - a_\infty]^2}, \quad (2.52)$$

$$Y(r_s, \xi) = \frac{4b_0(\xi)^2 r_s}{[c_x(\xi) - a_\infty]^4}, \quad (2.53)$$

$$Z(\xi) = \frac{-b_0(\xi)}{[c_x(\xi) - a_\infty]^3} - 1 \quad (2.54)$$

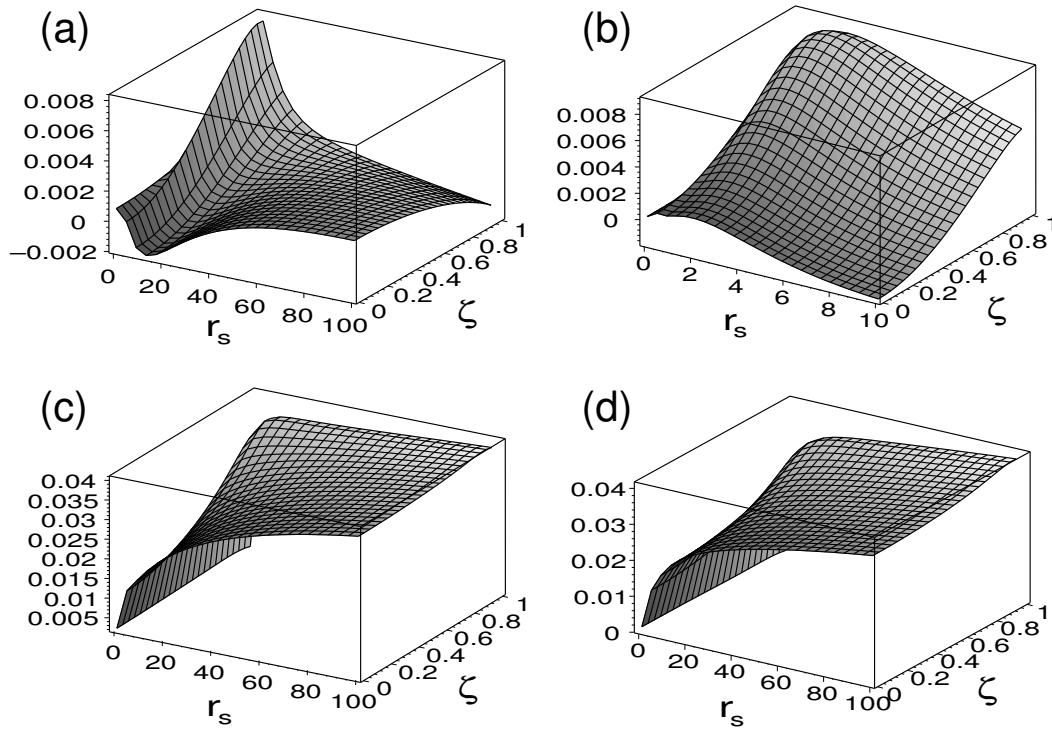


ABBILDUNG 2.2: Relative Abweichungen der Parametrisierungen der XC-Energien untereinander. (a) und (b) zeigen die relativen Abweichungen der AMGB- von der TC-Parametrisierung ($\varepsilon_{XC}^{AMGB}/\varepsilon_{XC}^{TC} - 1$) für die r_s -Intervalle $[0, 10]$ und $[0, 100]$ bei Polarisierungen $\xi \in [0, 1]$. In (c) ist der relative Unterschied zwischen ISI- und TC-Version dargestellt ($\varepsilon_{XC}^{ISI}/\varepsilon_{XC}^{TC} - 1$) und in (d) der zwischen ISI- und AMGB-Formel ($\varepsilon_{XC}^{ISI}/\varepsilon_{XC}^{AMGB} - 1$).

und

$$a_\infty = -(2 - 8/(3\pi)), \quad (2.55)$$

$$b_0(\xi) = 0.1125\xi^8 - 0.1495\xi^6 + 0.083\xi^4 + 0.107\xi^2 - 0.192, \quad (2.56)$$

$$c_x(\xi) = -\frac{2\sqrt{2}}{3\pi} \left[(1 + \xi)^{3/2} + (1 - \xi)^{3/2} \right] \quad (2.57)$$

gegeben.

Abbildung 2.2 zeigt die relativen Abweichungen der Parametrisierungen, d.h. $\varepsilon_{XC}^{(1)}/\varepsilon_{XC}^{(2)} - 1$. (a) und (b) vergleichen die AMGB-Formel mit der TC-XC-Energie. Einerseits ist die gute Übereinstimmung bis auf 0.008 zwischen beiden Parametrisierungen nicht überraschend, da beide auf derselben Methode basieren. Andererseits ist sie doch bemerkenswert, da AMGB explizite Rechnungen für Polarisierungen $0 < \xi < 1$ durchgeführt haben, während TC über diesen Bereich interpolieren. Größere Abweichungen sind dagegen beim Vergleich von $\varepsilon_{XC}^{ISI}/\varepsilon_{XC}^{TC} - 1$ in (c) bzw. $\varepsilon_{XC}^{ISI}/\varepsilon_{XC}^{AMGB} - 1$ in (d) festzustellen. Die relativen Differenzen betragen dort bis zu 0.04, speziell für vollständige Polarisierung. Diese Abweichung ist wohl auf die unterschiedlichen Ansätze (ISI analytisch, TC und AMGB numerisch) zurückzuführen.

2.4.2 Korrekturen durch Ströme bzw. Vortizität

Gleichung (2.40) gestattet, jeder Vortizität, die per definitionem von der paramagnetischen Stromdichte abhängt, ein fiktives Magnetfeld für ein homogenes System zuzuordnen. Von dieser Eigenschaft machen die in der Literatur skizzierten Korrekturen durch Ströme bzw. Vortizität Gebrauch. Sie werden als Funktion von B_{hom} oder vom lokalen Füllfaktor $f = 2\pi n l_B^2$ angegeben. Der lokale Füllfaktor definiert die Zahl besetzter Landau-Niveaus im Magnetfeld B für ein 2D-System der Dichte n ; $l_B = \sqrt{\hbar/(eB_{\text{hom}})}$ ist die mit dem Magnetfeld B_{hom} verknüpfte magnetische Länge.

Für kleine Magnetfelder berechnen Isihara et al. (1979⁶⁹) die Änderung der GZ-Energie eines unpolarisierten 2DEG in Abhängigkeit vom Parameter $\alpha = [\hbar\omega_c/(4\text{Ry})]^2$ zu

$$\begin{aligned} \Delta\varepsilon_{\text{tot}}/\text{Ry} = & \alpha r_s^2 \left[\left(\frac{1}{3} - \frac{g^2}{4} \right) + (-5.540 \times 10^{-3} - 0.1125 g^2) r_s + 0.03751 r_s \ln r_s \right. \\ & \left. + (1.184 \times 10^{-2} g^2 - 0.1071) r_s^2 + 1.689 \times 10^{-2} r_s^2 \ln r_s \right]. \end{aligned} \quad (2.58)$$

Im Limes hoher Magnetfelder wächst die Inter-Landau-Level-(LL)-Energie $\hbar\omega_+$ an, und der Beitrag höherer LL zu den Korrelationseffekten des GZs wird vernachlässigbar. Zusätzlich sorgt die Zeeman-Energie für eine Spin-Polarisation des Systems. In diesem Regime gilt die von Laughlin (1983⁹²) für die Füllfaktoren $f = m^{-1} < 1$ (m ungerade Zahl) postulierte Beziehung[‡]

$$\varepsilon_{\text{XC}}(f = m^{-1}) = \frac{e^2}{l_B \sqrt{2m}} \int_0^\infty dx [g_f(x l_B) - 1]. \quad (2.59)$$

Für diskrete Füllfaktoren $f = \frac{1}{3}, \frac{1}{5}$ berechnen Levesque, Weis & MacDonald⁹⁵ (LWM) die XC-Energie mit Hilfe der Paarkorrelationsfunktionen $g_f(r)$ des klassischen 2D-Plasmas mit der Dichte $n = f/(2\pi l_B^2)$ unter Verwendung statistischer Methoden.¹⁶ Durch Interpolation erhalten sie als Ergebnis eine geglättete Formel für die Abhängigkeit der XC-Energie vom Füllfaktor f , die für $f < 1$ gültig ist,

$$\varepsilon_{\text{XC}}^{\text{LWM}}(r_s, f)/\text{Ry} = -0.782133 \frac{2\sqrt{2}}{r_s} (1 - 0.211 f^{0.74} + 0.012 f^{1.7}). \quad (2.60)$$

Obwohl Vignale (1995¹⁶²) die Befürchtung äußert, daß die exakte XC-Energie irregulär und nicht differenzierbar sein könnte, wird die Parametrisierung (2.60) in einer Vielzahl von Arbeiten^{39,40,138,148,149} verwendet, da man annimmt, daß sie einen wichtigen Anteil der XC-Effekte in hohen Magnetfeldern reproduziert.

Fano & Ortolani (FO) (1988³⁸) verfolgen einen alternativen Ansatz zur Parametrisierung von Korrekturen durch Ströme: Sie lassen sich von der Teilchen-Loch-Symmetrie für Elektronen im untersten Landau-Niveau bei sehr großen Magnetfeldern leiten und

[‡]Der Limes $B \rightarrow \infty$ entspricht bei endlichem f dem Grenzfall hoher Dichten ($r_s \rightarrow 0$).

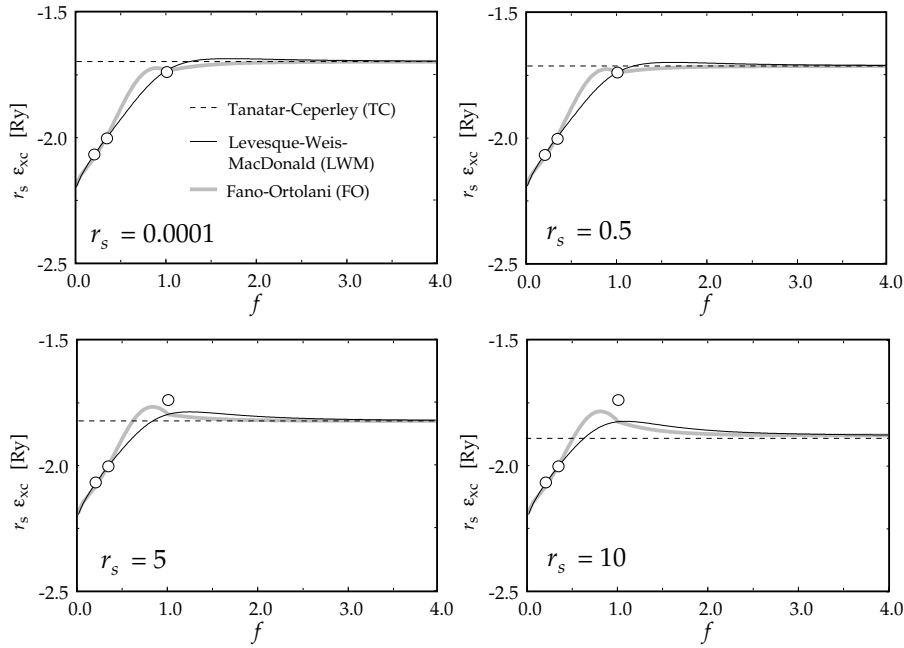


ABBILDUNG 2.3: Interpolation der Austausch-Korrelations-Energie eines spin-polarisierten 2DEG ($\xi = 1$) nach Gleichung (2.62) für verschiedene Dichteparameter r_s , jeweils unter Verwendung der Parametrisierungen von Fano-Ortolani³⁸ und Levesque-Weis-MacDonald⁹⁵. Die Kreise markieren die exakten Ergebnisse für $f = \frac{1}{5}, \frac{1}{3}$ und 1 im Limes $r_s \rightarrow 0$ (die Abbildung ist aus Referenz¹⁴⁸ entnommen).

konstruieren eine Interpolation, die das analytisch bekannte Ergebnis für $f = 1$ (Yoshioka & Lee, 1983¹⁸¹) exakt reproduziert

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\text{XC}}^{\text{FO}}(r_s, f)/\text{Ry} = \frac{2\sqrt{2}}{f^{3/2}r_s} \left[-\sqrt{\frac{\pi}{8}}f^2 - 0.782133f^{3/2}(1-f)^{3/2} \right. \\ \left. + 0.683f^2(1-f)^2 - 0.806f^{5/2}(1-f)^{5/2} \right]. \end{aligned} \quad (2.61)$$

Zur Berechnung von GZen von 2D-Systemen wird eine XC-Energie $\varepsilon_{\text{XC}}(r_s, \xi, f)$ als Funktion beliebiger Tupel (r_s, ξ, f) vorausgesetzt. Dies geschieht wiederum in Form einer Interpolation¹³⁵

$$\varepsilon_{\text{XC}}(r_s, \xi, f) = \frac{\varepsilon_{\text{XC}}^{\text{LWM/FO}}(r_s, f) + f^p \varepsilon_{\text{XC}}^{\text{TC/AMBG/ISI}}(r_s, \xi)}{1 + f^p}. \quad (2.62)$$

Die Padé-Approximation liefert für große Füllfaktoren f (d.h. kleine B) das bekannte Ergebnis $\varepsilon_{\text{XC}}^{\text{TC}}(r_s, \xi)$ der LSDA, im Grenzfall hoher Magnetfelder und $f < 1$ werden Korrekturen durch Ströme berücksichtigt. Als Exponent p schlagen Rasolt & Perrot (1992¹³⁵) $p = 4$ vor, wobei aber prinzipiell keine starke Abhängigkeit von diesem Parameter zu existieren scheint.^{135,148} Die Verwendung von Gleichung (2.62) wird in den Arbeiten von Ferconi & Vignale (1994³⁹), Steffens (1999¹⁴⁸) und Reimann et al. (2000¹³⁷)

	a_0	a_1	b_1	$a_2 \times 10^{-3}$	$b_2 \times 10^{-3}$
$f = 2$	-0.8642	-0.3883	0.4221	-19.85	18.97
$f = 1$	-0.8882	-0.7518	0.8281	-41.28	39.52
$f = 1/3$	-1.0041	-0.01561	0.01466		
$f = 1/5$	-1.03558	-0.007768	0.007241		
$f = 1/7$	-1.05075	-0.004958	0.004602		

TABELLE III: Parameter der Padé-Approximation (2.64) für ein spin-polarisiertes 2D-Elektronengas im FQHE-Regime.¹³⁰

durch übereinstimmende Ergebnisse von (C)SDFT und exakten Methoden wie Exakter Diagonalisierung oder Quanten-Monte-Carlo-Rechnungen gerechtfertigt. Wie jedoch in Kapitel 6 gezeigt wird, treten sehr wohl signifikante Unterschiede in den GZ-Energien und Dichten zwischen ED und CSDFT auf. Diese sind Anlaß, die verwendeten Interpolationen kritisch zu hinterfragen.

Abbildung 2.3 zeigt die Interpolationen der XC-Energien für verschiedene r_s . Allerdings sei angemerkt, daß die LWM- und FO-Parametrisierungen genaugenommen nur im Grenzfall $r_s \rightarrow 0$ korrekt sind.

Ein weiterer Ansatz zur Beschreibung von XC-Energien im Fractional-Quantum-Hall-Effect(FQHE)-Regime wurde von Price & Das Sarma (1996¹³⁰) entwickelt. Seine spezielle Form berücksichtigt insbesondere die Unstetigkeiten der Ableitung bei den Füllfaktoren $f = 2, 1, \frac{1}{3}, \frac{1}{5}$ und $\frac{1}{7}$, deren Ursache die Energielücke E_g zwischen GZ und angeregten Zuständen ist.

Price & Das Sarma (PD) erhalten $\varepsilon_g(f) = E_g(f)/N$ aus Variational Monte Carlo-Rechnungen. Mit Hilfe des Ausdrucks⁹⁸

$$\varepsilon_g(f) = f^2 \left(\left. \frac{\partial \varepsilon_{XC}}{\partial f} \right|_{f=f^+} - \left. \frac{\partial \varepsilon_{XC}}{\partial f} \right|_{f=f^-} \right) \quad (2.63)$$

ist $\varepsilon_{XC}(f)$ durch kubische Splines¹²⁹ zu interpolieren, so daß die Knicke bei den entsprechenden Füllfaktoren gemäß Gleichung (2.63) reproduziert werden. Die Padé-Interpolation für die r_s -Abhängigkeit von $\varepsilon_{XC}(r_s, f)$ und $\varepsilon_g(r_s, f)$ zu den Füllfaktoren sind durch

$$\varepsilon_{XC}^{PD}(r_s, f)/Ry = \frac{2}{r_s} \frac{a_0 + a_1 r_s + a_2 r_s^2}{1 + b_1 r_s + b_2 r_s^2} \quad (2.64)$$

und die Parameter aus Tabelle III gegeben. Somit erlaubt Gleichung (2.64), XC-Effekte des FQHE-Regimes in CSDFT-Rechnungen zu integrieren. Allerdings wird dieser Ansatz in Hinblick auf seine Anwendung auf inhomogene, endliche Systeme auch durchaus kritisch gesehen. Die Struktur der Korrelationseffekte könnte sich signifikant von der homogener Systeme unterscheiden.¹⁴⁸

Abbildung 2.4 (aus Steffens (1999¹⁴⁸)) zeigt die Unterschiede der verschiedenen Ansätze zur Parametrisierung der XC-Energie. Die Unstetigkeiten der Ableitung $\partial \varepsilon_{XC}^{PD}(r_s, f)/\partial f$ paßte Steffens (1999¹⁴⁸) unter Verwendung der Teilchen-Loch-Symmetrie im untersten Landau-Niveau und der Spline-Interpolation an die

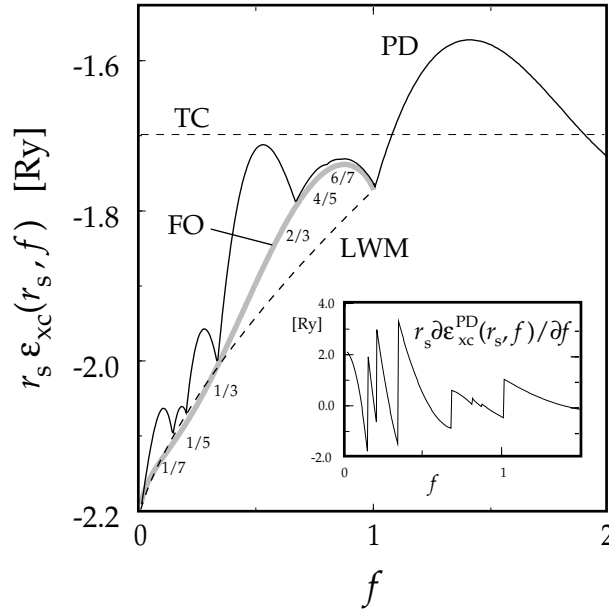


ABBILDUNG 2.4: Vergleich der Interpolationsformeln $\varepsilon_{XC}(r_s, f)$ für ein spinpolarisiertes 2DEG in Abhängigkeit des Füllfaktors f für $r_s \rightarrow 0$. Gezeigt werden die Formeln von Levesque et al. (LWM)⁹⁵ (---) und Fano-Ortolani (FO)³⁸ (—) im Regime $f < 1$ neben einer kubischen Spline-Interpolation nach Price-Das Sarma (PD)¹³⁰ (—). Die Spline-Interpolation hat unstetige Ableitungen (Kuspen) bei den Füllfaktoren $f = \frac{1}{7}, \frac{1}{5}, \frac{1}{3}$ bzw. $\frac{2}{3}, \frac{4}{5}, \frac{6}{7}$. Im kleinen Bild ist die Ableitung $r_s \partial \varepsilon_{XC}^{PD}(r_s, f) / \partial f$ dargestellt. Die gestrichelte Gerade gibt die Austausch-Korrelation nach TC¹⁵³ an, die in der Interpolationsformel (2.62) im Limes großer Füllfaktoren dominiert (die Abbildung ist aus Referenz¹⁴⁸ entnommen).

Monte-Carlo-Ergebnisse von Price-Das Sarma an. Während die glatten Interpolationen von Levesque et al. sowie von Fano & Ortolani mit den Monte-Carlo-Werten von Price-Das Sarma übereinstimmen, zeigt die Spline-Interpolation starke Diskrepanzen in den dazwischenliegenden Bereichen.

Am Ende dieses Abschnitts möchten wir darauf hinweisen, daß es möglich ist, die in Gleichung (2.62) fehlende Polarisationsabhängigkeit der XC-Energie im Limes $f \ll 1$ durch die Korrektur

$$\varepsilon_{XC}^{(kor)}(r_s, \xi, f) = \varepsilon_{XC}(r_s, \xi = 1, f) + f(\xi) \Delta \varepsilon_{XC}(r_s, f) \quad (2.65)$$

zu ergänzen. Die Interpolationsfunktion $f(\xi)$ ist dieselbe wie in Gleichung (2.44).¹¹⁹ Allerdings ist $\Delta \varepsilon_{XC}(r_s, f) = [\varepsilon_{XC}(r_s, \xi = 0, f) - \varepsilon_{XC}(r_s, \xi = 1, f)]$ nicht exakt bekannt. Lubin et al. (1997⁹⁶) schlagen eine aufwendige Spline-Interpolation zwischen speziellen Füllfaktoren vor, die auf Exakten Diagonalisierungen von Chakraborty & Zhang (1984²¹) basieren. Von Steffens (1999¹⁴⁸) durchgeführte Testrechnungen unter Berücksichtigung dieser Korrektur zeigen zwar Abweichungen in der magnetfeldabhängigen Gesamtenergie, allerdings ist die Übereinstimmung zwischen Rechnungen mit Korrektur und Exakten Diagonalisierungen nicht entscheidend besser, so daß er sich i.a. auf die Parametrisierung (2.62) beschränkt.

2.5 Kohn-Sham-Formalismus für Quantenpunkte

In Abschnitt 1.2.1 wurden die Symmetrien des durch den Hamilton-Operator (1.27) bzw. (1.34) beschriebenen wechselwirkenden Vielteilchen-Systems diskutiert. Wählt man Basiszustände, die gleichzeitig Eigenfunktionen des Hamilton-Operators und der Symmetrieeoperatoren sind, so gilt insbesondere für die GZ-Dichten $n_\sigma(\mathbf{r}) = n_\sigma(r)$ und $\mathbf{j}_p(\mathbf{r}) = j_p(r) \mathbf{e}_\varphi$, d.h. sie hängen nur vom Radius, aber nicht vom Winkel ab. Außerdem hat die paramagnetische Stromdichte nur eine Azimutalkomponente (vgl. Paragraph 1.3). Daraus folgt, daß auch die Vortizität $v(r)$

$$\mathbf{v}(r) = \nabla \times \left(\mathbf{e}_\varphi \frac{j_p(r)}{n(r)} \right) = \mathbf{e}_z \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{j_p(r)}{n(r)} \right) \quad (2.66)$$

nur eine Funktion von r ist. Damit vereinfachen sich auch die Darstellungen des Hartree-Potentials (2.27) zu $V_H(\mathbf{r}) = V_H(r)$ (vgl. auch Anhang B), des XC-Vektorpotentials (2.35) und der XC-Potentiale (2.36) (in lokaler Dichtenäherung) zu

$$eA_{XC}(r) = -e_\varphi \frac{1}{n(r)} \frac{\partial}{\partial r} \left(n(r) \frac{\partial \varepsilon_{XC}}{\partial v}(r) \Big|_{\{n_\sigma\}} \right) \quad (2.67)$$

$$V_{XC\sigma}(r) = \varepsilon_{XC}(n_\uparrow(r), n_\downarrow(r), v(r)) + n(r) \frac{\partial \varepsilon_{XC}}{\partial n_\sigma}(r) \Big|_{n_\sigma, v} - \frac{e}{c} A_{XC,\varphi}(r) \frac{j_p(r)}{n(r)}. \quad (2.68)$$

Unter Berücksichtigung von (2.67) und (2.68) lautet der effektive KS-Hamilton-Operator der CSDFT[§] für Quantendots (QDs) mit isotropem parabolischem Confinement-Potential

$$\begin{aligned} H_{KS} = & -\frac{\hbar^2}{2m^*} \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} \right] + \frac{1}{2} m^* \omega_h^2 r^2 + \frac{\partial}{\partial \varphi} \left(\frac{\hbar \omega_c}{2i} + \frac{\hbar e}{im^*} \frac{A_{XC,\varphi}(r)}{r} \right) \\ & + V_H(r) + \sum_\sigma (-g^* \mu_B B \sigma / 2 + V_{XC\sigma}(r)) |\sigma\rangle \langle \sigma|. \end{aligned} \quad (2.69)$$

Offensichtlich erlaubt die Struktur von (2.69) die Separation der Wellenfunktionen in einen Radial- und einen Winkelanteil $\psi_{nm\sigma}(\mathbf{r}) = \xi_{nm\sigma}(r) e^{im\varphi}$. Mit Hilfe der Besetzungszahlen $f_{nm\sigma}$ folgt für GZ-Dichten, -Drehimpuls und -Spin

$$n_\sigma(r) = \sum_{nm} f_{nm\sigma} |\xi_{nm\sigma}(r)|^2 \quad (2.70)$$

$$j_p(r) = \frac{\hbar}{m^* r} \sum_{nm\sigma} f_{nm\sigma} m |\xi_{nm\sigma}(r)|^2 \quad (2.71)$$

$$L/\hbar = \sum_{nm\sigma} f_{nm\sigma} m \quad (2.72)$$

$$S_z/\hbar = \sum_{nm\sigma} f_{nm\sigma} \sigma / 2. \quad (2.73)$$

Wie für die exakten Eigenzustände des wechselwirkenden Hamilton-Operators (1.27) bzw. (1.34) sind auch für die KS-Wellenfunktion L und S_z gute Quantenzahlen

[§]Um das entsprechende KS-Schema der SDFT zu erhalten, wird (formal) $A_{XC,\varphi}(r) \equiv 0$ gesetzt.

sowie die Dichten nicht winkelabhängig. Wie von Wensauer (1999¹⁷⁰) gezeigt wird, tritt eine φ -Abhängigkeit der Dichten nur dann auf, falls der zugrunde liegende Zustand eine Superposition von zwei Zuständen mit unterschiedlichen Drehimpulsen ist. Diese Situation liegt für den GZ eines QDs in zwei verschiedenen Fällen vor: Die Zeitumkehrsymmetrie für $B = 0$ führt bei GZen mit endlichem Drehimpuls zu Entartungen der GZe mit $\pm L$, oder im wachsenden Magnetfeld wird ein GZ-Zustand mit Drehimpuls L durch einen weiteren GZ mit Drehimpuls L' verdrängt, was eine zufällige Entartung an der Niveaureuzung zur Folge hat. D.h. aufgrund des diskreten Spektrums eines QDs können GZe als Superposition von zwei Zuständen mit verschiedenen Drehimpulsen nur für diskrete Magnetfelder auftreten, wohingegen für fast alle B der GZ eindeutige Quantenzahlen L und S_z aufweist.[¶]

Im Gegensatz zu den Arbeiten von Koskinen et al. (1997⁸⁶), Reimann et al. (1999¹³⁸), Heinonen et al. (1999⁶²) stellen wir uns hier auf den Standpunkt, daß die Erhaltung der Symmetrie während der selbstkonsistenten, iterativen Lösung der KS-Gleichungen sinnvoll ist, da das (nicht bekannte) exakte XC-Funktional für fast alle B (d.h. außer wo GZ-Entartung vorliegt) axialsymmetrische GZ-Dichten liefern muß. Folglich sollte auch eine Näherung des XC-Funktional diese Eigenschaft weitestgehend reproduzieren. Umgekehrt könnte dieses Charakteristikum sogar als Maß für die Qualität einer Approximation des XC-Funktional betrachtet werden.

Ein ähnlich geartetes Problem finden wir im Kontext von HF-Rechnungen.¹⁴¹ Dort führen Wellenfunktionen mit gebrochener Symmetrie aufgrund der Erweiterung des Variationsraums immer zu niedrigeren oder zumindest gleichen GZ-Energien im Vergleich zu nicht-symmetriegebrochenen Zuständen. In einer nachfolgenden Rechnung ist es aber möglich, die Symmetrien durch entsprechende Projektionsmethoden zu rekonstruieren.¹⁴¹ Damit ist der GZ wieder Eigenfunktion des Symmetrieoperators und seine Energie ist höchstens so hoch wie die der symmetriegebrochenen Slater-Determinante (vgl. Kainz (2000⁷³)). Zusätzlich erhält man eine Reihe von energetisch tief liegenden Zuständen, die häufig als niedrigste kollektive Anregungen interpretiert werden (bei Kernen: Rotationsspektrum).¹⁴¹ Ein vergleichbares Konzept ist bisher für die DFT/LDA nicht entwickelt worden. Ein Grund ist das Fehlen des Ritzschen Prinzips in der DFT, d.h. die Energie des DFT/LDA-GZs ist keine obere Schranke für die tatsächliche GZ-Energie des Systems.

Ein weiterer Aspekt ist die Rolle, die der Gesamtspin für die KS-Wellenfunktion spielt. Während für unpolarisierte ($S = S_z = 0$) und voll polarisierte ($S = \pm S_z = \hbar N/2$) Zustände die Slater-Determinante des KS-Systems gleichzeitig eine Eigenfunktion des Gesamtspinoperators S^2 darstellt, ist dies für teilpolarisierte Zustände nicht der Fall. Zunächst wird zwar grundsätzlich $S = \pm S_z$ vorausgesetzt, um Austauscheffekte möglichst korrekt zu erfassen.^{||} Allerdings bleibt die Frage, ob die von Gunnarsson & Lundqvist (1976⁵²) vorgeschlagene Projektion der KS-Slater-Determinante auf den Un-

[¶]Im Falle einer zufälligen Entartung oder einer Entartung bei $B = 0$ kann die Symmetrie im KS-Schema durch eine explizite Kontrolle des Gesamtdrehimpulses sichergestellt werden. Durch die Einschränkung auf einen Unterraum wird gleichzeitig die in Abschnitt 2.1.3 diskutierte Problematik von Entartungen im KS-Formalismus vermieden.

^{||}In Anhang C untersuchen wir die Dichten und paramagnetischen Stromdichten von Multiplett-zuständen des Hamiltonians, d.h. Eigenzuständen von $\hat{S}^2$ und $\hat{S}_z$. Es zeigt sich, daß alle Zustände mit $S_z = -S, -S + 1, \dots, S$ dieselbe Dichte und paramagnetische Stromdichte aufweisen. Dagegen liegt in

terraum mit Gesamtspin S notwendig ist**, nach wie vor unbeantwortet.⁵² In diesem Fall folgen wir den Originalarbeiten zur (C)SDFT^{9,163,164}, die eine Symmetrisierung der Gesamtwellenfunktion bezüglich des Gesamtspinoperators nicht vorsehen, d.h. wir besetzen die untersten Zustände jeder Spinrichtung gemäß N und S_z .

Als letzte Symmetrie ist noch die CM-Symmetrie zu diskutieren. Ihre explizite Implementierung in das KS-Schema wurde bis jetzt in der Literatur noch gar nicht angesprochen. Auch angesichts der Komplexität der CM-Operatoren (1.54) und (1.55) verzichteten wir wie beim Gesamtspin auf eine Symmetrisierung der KS-Wellenfunktion. Allerdings zeigen mit Hilfe der zeitabhängigen DFT berechnete FIR-Anregungsspektren das verallgemeinerte Kohnsche Theorem^{29,161}, das für die CM-Symmetrie typisch ist. Daraus läßt sich schlußfolgern, daß diese Symmetrie implizit berücksichtigt wird.

Zusammenfassend wollen wir festhalten, daß wir in Fragen der Symmetrien eine pragmatische Linie verfolgen: Soweit sich ihre Implementierung physikalisch rechtfertigen läßt wie bei S_z und L , d.h. physikalische Relevanz besitzt, wird sie durchgeführt (siehe dazu auch Kapitel 3 und 5). Im Falle von Gesamtspin oder CM-Bewegung, wo mit großem Aufwand ein physikalisch nicht fundiertes Ergebnis erzielt werden würde, nehmen wir Abstand vom Konzept der Symmetrisierung der KS-Wellenfunktion.

Andere Einschlußpotentiale mit anharmonischen Anteilen oder gebrochener Axialsymmetrie wurden bereits in früheren Arbeiten untersucht (z.B. Darnhofer (1996²⁹), Wensauer (1999¹⁷⁰)). In dieser Arbeit soll aber der Schwerpunkt auf Vergleichen zwischen ED und DFT liegen. Aufgrund des enormen numerischen Aufwands der ED ist dort die Axialsymmetrie unverzichtbar sowie eine Beschränkung auf eine Potentialform notwendig. Deshalb wurde dem Standardpotential, dem isotropen harmonischen Oszillator, der Vorzug gegeben.

den Fällen $S_z = \pm S$ die meiste Information über die Polarisation und damit auch über Austauscheffekte vor, was zur besten Beschreibung durch die SDFT führt.

**Die projizierte Wellenfunktion würde zu einer anderen Dichte führen als die ursprüngliche Slater-Determinante.

KAPITEL 3

Anwendung der Dichtefunktional-Theorie: Stabilität des $\nu = 2$ -Droplets

Die Stärken der DFT gegenüber anderen Methoden zur Beschreibung der GZ-Eigenschaften von wechselwirkenden Vielteilchen-Systemen liegen darin, daß die GZ-Energie und -Dichte von Systemen mit vergleichsweise hohen Teilchenzahlen unter Berücksichtigung von XC-Effekten berechnet werden können. Da die DFT-Rechnung auf einem Einteilchen-Bild basiert, erlaubt die numerische Implementierung kurze Rechenzeiten im Vergleich mit ED- oder QMC-Methoden sowie die Abdeckung eines großen Parameterraums. In diesem Kapitel stellen wir eine typische Anwendung der DFT vor, die die genannten Vorteile klar demonstriert, aber auch gleichzeitig die Grenzen der DFT, die hauptsächlich durch die Unkenntnis der exakten XC-Funktionale bzw. Unsicherheiten in den verfügbaren Parametrisierungen bedingt sind, klar vor Augen führt. Damit wollen wir die Motivation, deren Schwerpunkt bisher vorwiegend auf mathematischen, grundlagen-theoretischen Aspekten liegt, auch um eine anwendungsorientierte Seite bereichern.

Im Mittelpunkt der folgenden Abschnitte steht die Untersuchung der Stabilität des Spinsingulett-Quanten-Hall-Droplets (QHDs) eines parabolischen Quantendots (QDs) bei Füllfaktor $\nu = 2$.^{*} Der Ursprung der Elektronenkonfiguration der QHDs liegt im Wechselspiel von (quasi-)zweidimensionalem Confinement-Potential, Coulomb-Wechselwirkung und Magnetfeld.^{4,20,70,76,87} Die einfachsten und zugleich prominentesten Vertreter sind das vollständig spin-polarisierte $\nu = 1$ -Droplet und das Spinsingulett- $\nu = 2$ -Droplet.

Im nicht-wechselwirkenden Einteilchen-Bild entspricht das $\nu = 2$ -QHD einer Elektronenkonfiguration, bei der die energetisch ansteigenden Zustände des untersten Landau-Levels (LLL) paarweise mit Spin-up- und Spin-down-Elektronen besetzt sind (vgl. Abbildung 3.1).²⁴

Aufgrund ihrer charakteristischen elektronischen Struktur sind QHDs sowohl experimentell^{5,8,11,24,59,78,107,108,120,143,151,154,155,168} wie theoretisch^{22,24,58–60,66,107,108,117,122,169,177,179} intensiv untersucht worden. Dabei lag aus theoretischer Sicht der Schwerpunkt auf

^{*}In diesem Kapitel wird der Füllfaktor mit ν statt mit f bezeichnet, da keine Verwechslungsgefahr mit der Vortizität v besteht.

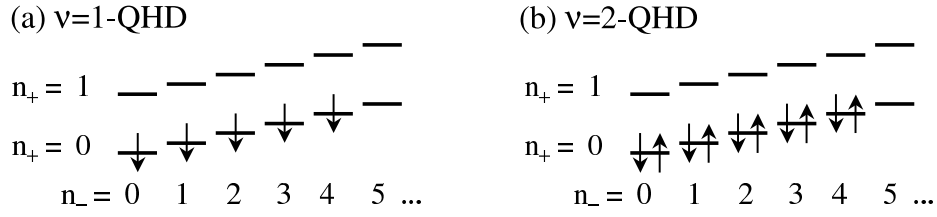


ABBILDUNG 3.1: Elektronische Konfiguration des $\nu = 1$ -QHDs (a) bzw. $\nu = 2$ -QHDs (b) mit fünf bzw. zehn Elektronen. n_+ und n_- sind die LL- und Intra-LL-Quantenzahlen.

dem $\nu = 1$ -Droplet.^{22,169,179} Allerdings kann das spin-polarisierte $\nu = 1$ -Droplet experimentell im Coulomb-Blockade-(CB)-Spektrum nicht leicht identifiziert werden.¹²⁰ Dagegen ist die $\nu = 2$ -Linie, von der angenommen wird, daß ihr Ursprung eng mit dem Auftreten des $\nu = 2$ -Droplets verknüpft ist, das auffälligste Merkmal im Additionsspektrum von QDs.⁵ Es ist daher nicht weiter verwunderlich, daß sich die neuesten Experimente an QDs auf $\nu = 2$ -QHDs konzentrieren, insbesondere in Verbindung mit Kontrolle der Elektronenzahl¹⁵⁵ bzw. Kontrolle der Elektronenzahl und spin-polarisierter Injektion/Detektion.²⁴

In den folgenden Abschnitten werden wir uns ausführlich mit der Stabilität und den untersten angeregten Zuständen des $\nu = 2$ -QHDs als Funktion des Magnetfeldes, der Elektronenzahl N , der Confinement-Energie $\hbar\omega_0$ und der Zeeman-Energie E_z (bzw. des g -Faktors) befassen. Dabei wird der Fokus auf möglichen GZ-Übergängen liegen, die von einem Elektronentransfer vom Rand ins Dotzentrum (ins zweite LL) bei kleinen Magnetfeldern bzw. von einem Spinflip am Rand bei hohen Magnetfeldern herrühren.[†] Ausgehend von dem in Abbildung 3.1 (b) gezeigten $\nu = 2$ -QHD bedeutet ein Übergang ins Dotzentrum, daß ein Spin-up-Elektron vom Randzustand $(n_+, n_-) = (0, 4)$ in den Spin-down-Zustand $(1, 0)$ wandert. Andererseits kann ein Spinflip am Rand durch den Übergang des Spin-up-Elektrons vom Niveau $(0, 4)$ nach $(0, 5)$ mit Spin-down veranschaulicht werden. Damit verbunden sind charakteristische Muster im Additions- und Stromamplitudenspektrum entlang der $\nu = 2$ -Linie in CB-Experimenten. Wir werden zeigen, daß die in jüngsten Experimenten²⁶ (vgl. auch Abschnitt 3.5) beobachtete Umkehrung der Modulation der Stromamplitude entlang der $\nu = 2$ -Linie jenseits einer kritischen Teilchenzahl N_c die Folge des Zusammenbruchs des $\nu = 2$ -QHDs als GZ ist.^{26,174} Um den Vielteilchen-Effekten Rechnung zu tragen, werden sowohl HF- wie SDFT-Methoden verwendet und verglichen. Bei allen unseren Rechnungen setzen wir ein parabolisches Potential voraus, wie es für weiches Confinement in lateralen und vertikalen Devices mit Gate-Strukturen typisch ist. Der Einfluß von anharmonischen Beiträgen wird in der Arbeit von Ciorga et al. (2002²⁶) angesprochen, soll an dieser Stelle aber nicht diskutiert werden.

[†]Wie Abbildung 3.3 zeigt, bedeutet *Rand* einerseits eine hohe Intra-LL-Quantenzahl n_- und andererseits eine ringförmige Elektronendichte bei großen Radien. *Dotzentrum* steht für eine kleine Intra-LL-Quantenzahl n_- (bei $n_+ = 0, 1$) und eine bei kleinen Radien konzentrierte Elektronendichte.

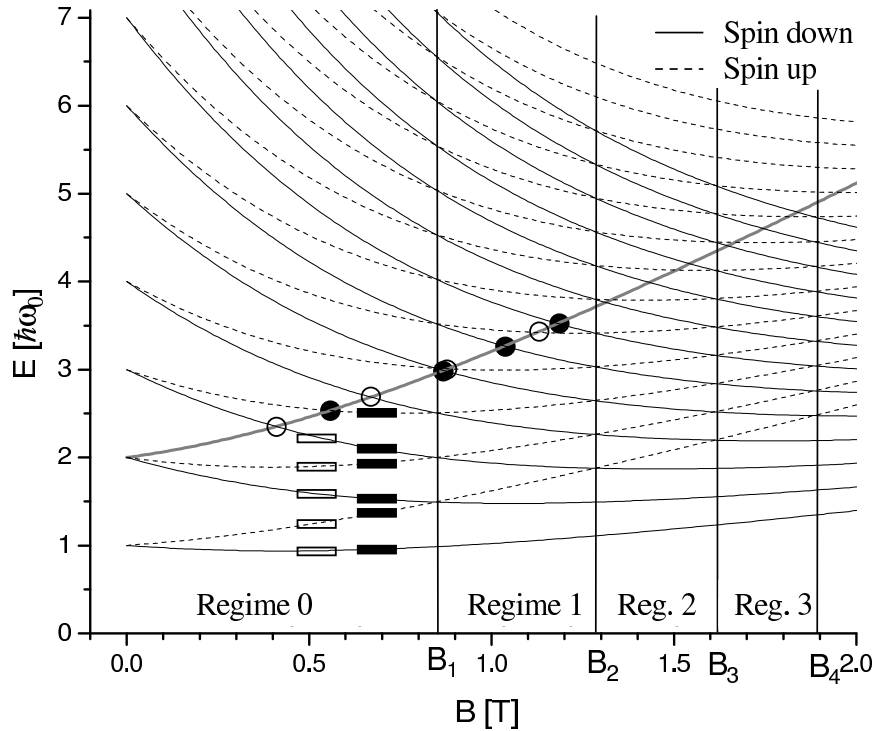


ABBILDUNG 3.2: FD-Spektrum mit überhöhter Zeeman-Energie für $\hbar\omega_0 = 1\text{meV}$ und $E_z/B = 0.6\text{meV/T}$ ($g \approx -10$). Abgebildet sind die spin-aufgespaltenen Niveaus des LLLs und das energetisch niedrigste (Spin-down)-Niveau des zweiten LLs, das die Energien der Zustände aus dem LLL schneidet. Durch den Schnittpunkt ist für jede Teilchenzahl N ein kritisches Magnetfeld $B_{\nu=2}(N)$ definiert, bei dem der Übergang des letzten Elektrons aus dem zweiten LL in das LLL stattfindet. Da dieser Ladungstransfer mit einer charakteristischen Änderung des Drehimpulses und Spins verbunden ist, kann er auch im wechselwirkenden Vielteilchen-System identifiziert werden. Somit ist die $\nu = 2$ -Linie durch die Funktion $B_{\nu=2}(N)$ eindeutig definiert. In der Abbildung ist die $\nu = 2$ -Linie in den Regimes 0 und 1 durch Punkte bzw. Kreise für gerade bzw. ungerade Elektronenzahlen gekennzeichnet. Die gefüllten Balken in Regime 0 symbolisieren die elektronische Konfiguration des $\nu = 2$ -Droplets, die nicht gefüllten Balken die des Analogons für ungerades N . Die verschiedenen Regimes werden durch Spinfliplinien getrennt (siehe Text).

3.1 Modell

Wichtige Eigenschaften der durch Drehimpuls und Spin bestimmten elektronischen Konfiguration eines QDs entlang der $\nu = 2$ -Linie können mit Hilfe des nicht-wechselwirkenden Systems plausibel gemacht werden. Insbesondere lassen sich aus diesem naiven Bild potentielle GZ-Kandidaten in der Umgebung der $\nu = 2$ -Linie extrahieren, die dann unter der Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung überprüft werden (siehe Abschnitt 3.2). Ebenso wird der Einfluß der Konfigurationen auf die Amplituden im CB-Spektrum diskutiert.

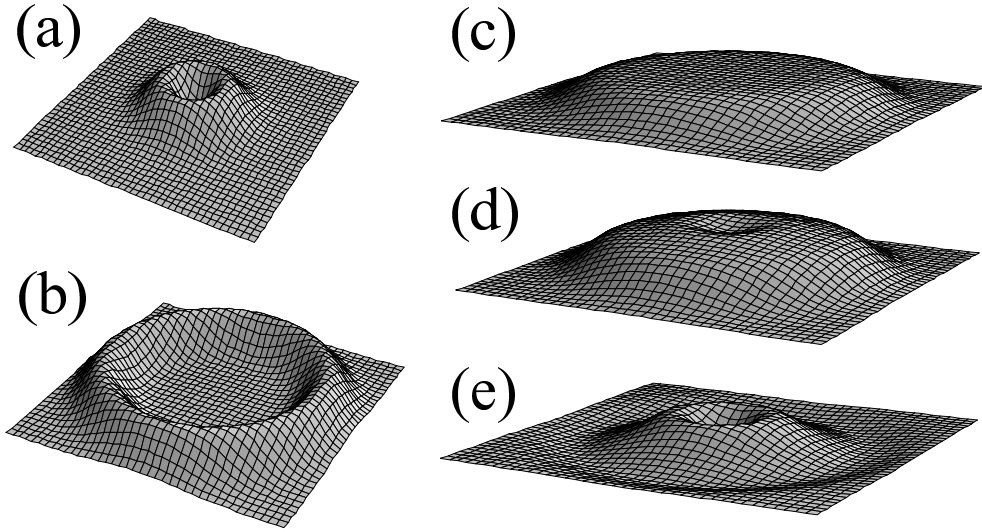


ABBILDUNG 3.3: Aufenthaltswahrscheinlichkeiten für ein Elektron (a) im Zentrum im Zustand $|1, 0\rangle$, (b) am Rand eines Dots im Zustand $|0, 9\rangle$. (c) und (d) zeigen die GZ-Dichte eines $\nu = 2$ -QHDs bzw. die Dichte der Centerkonfiguration für $N = 14$; (e) ist die Differenz der Dichten aus (c) und (d).

Abbildung 3.2 zeigt die spin-aufgespaltenen Einteilchen-Zustände $|n_+, n_-\rangle$ des nicht-wechselwirkenden Systems ($\hbar\omega_0 = 1\text{meV}$) als Funktion des Magnetfelds. Aus Darstellungsgründen wurde dabei eine überhöhte Zeeman-Energie von $E_z/B = 0.6\text{ meV/T}$ ($g \approx -10$) angenommen, die schon für $B < 1\text{T}$ in der Größenordnung der Intra-LL-Energie $\hbar\omega_-$ liegt. Darüber hinaus ist das Spektrum in verschiedene Regimes unterteilt, deren Eigenschaften im folgenden genauer untersucht werden.

Betrachten wir zunächst eine gerade Teilchenzahl¹⁷⁷ N des Regimes 0 in Abbildung 3.2. Die Elektronen besetzen sukzessive die Niveaus des LLLs (Balken) und bilden ein spin-unpolarisiertes $\nu = 2$ -Droplet. Wird das Magnetfeld verringert, dann ist bei $B_{\nu=2}(N)$ (Punkte) die Energie des Spin-down-Niveaus $|1, 0\rangle$ aus dem zweiten LL niedriger als die des höchsten besetzten Spin-up-Zustands aus dem LLL. Folglich findet ein Übergang des Elektrons vom Rand in das Dotzentrum statt, und das kritische Magnetfeld $B_{\nu=2}(N)$ hängt offensichtlich von der Teilchenzahl N ab. Gleichzeitig ändert sich auch der Spin von $S_z = 0$ nach $S_z = -1$. (Hier wie im folgenden verzichten wir bei der Angabe von Spin und Drehimpulsen auf $\hbar$.) Abbildung 3.3 illustriert die unterschiedlichen Aufenthaltswahrscheinlichkeiten für ein Teilchen. Im Zustand $|1, 0\rangle$ ist es in der Dotmitte lokalisiert (a), während $|0, n_-\rangle$ ein Teilchen am Rand des Dots beschreibt ((b), hier mit $n_- = 9$). Abbildung 3.3(c) zeigt die Ladungsverteilung für ein $\nu = 2$ -Droplet mit $N = 14$ Elektronen, (d) die Konfiguration nach dem Übergang des Elektrons zum Zentrum und (e) die Differenz der Verteilungen. Alle Konfigurationen mit einem Elektron im Zentrum, d.h. besetztem $|1, 0\rangle$ -Zustand, werden im folgenden als Centerkonfigurationen bezeichnet. Ist hingegen $|1, 0\rangle$ unbesetzt, so sprechen wir von einem Randzustand. (Das $\nu = 2$ -Droplet ist somit der einfachste Randzustand.)

Geht man wiederum vom $\nu = 2$ -Droplet aus und erhöht das Magnetfeld, so wird für das durch $\hbar\omega_-(B_1) = E_z(B_1)$ gegebene kritische Magnetfeld der Rand des

$\nu = 2$ -Droplets instabil, d.h. die Zeeman-Aufspaltung wird größer als die Intra-LL-Aufspaltung. Der höchste besetzte Spin-up-Zustand $|0, N/2 - 1\rangle$ des LLLs wird geleert. Statt dessen wird der energetisch niedrigere Spin-down-Zustand des LLLs $|0, N/2\rangle$ besetzt. Es entsteht eine neue spin-polarisierte Randkonfiguration.⁵⁹ Die Linie der Spinflips ist in Abbildung 3.2 bei B_1 parallel zur Ordinate eingezeichnet und zeigt im nicht-wechselwirkenden System keine Abhängigkeit von der Teilchenzahl, wie auch durch ihre Definitionsgleichung nahegelegt wird. Sie grenzt gleichzeitig Regime 0 von Regime 1 ab. Der durch $B_{\nu=2}(N)$ und die Spinflip-Linie B_1 definierte Bereich stellt die endliche, stabile $\nu = 2$ -GZ-Phase dar. N_c bezeichnet die höchste Teilchenzahl mit stabilem $\nu = 2$ -GZ.

Wenden wir uns nun den ungeraden Elektronenzahlen N im Regime 0 zu. Analog zum $\nu = 2$ -Droplet sind die Zustände des LLLs besetzt (offene Rechtecke) mit Ausnahme des Spin-up-Niveaus $|0, (N - 1)/2\rangle$. Somit resultiert ein Spin $S_z = -1/2$. Bei Unterschreitung des kritischen Magnetfelds $B_{\nu=2}(N)$ findet wiederum ein Ladungstransfer vom Randzustand $|0, (N - 1)/2\rangle$ ins Zentrum $|1, 0\rangle$ statt (Kreise in Regime 0); die entstehende Centerkonfiguration hat $S_z = -1/2$. Bei Erhöhung des Magnetfeldes erweist sich die erste Randkonfiguration für ungerades N als überaus stabil. Erst bei B_2 ($2\hbar\omega_-(B_2) = E_z(B_2)$) wandert das Spin-up-Elektron des Niveaus $|0, (N - 1)/2 - 1\rangle$ an den Rand und besetzt den Spin-down-Zustand $|0, (N - 1)/2 + 1\rangle$. Die so definierte Randkonfiguration trägt Gesamtspin $S_z = -3/2$. B_2 definiert die Spinfliplinie, die die Regimes 1 und 2 abtrennt. Die charakteristischen GZ-Konfigurationen sind in der Übersicht 3.4 für Regime 0 (und höhere Regime) zusammengefaßt.

Das durch die Bedingung $\hbar\omega_-(B_1) = E_z(B_1)$ definierte kritische Magnetfeld B_1 ist nicht nur für Randkonfigurationen relevant. Es führt auch dazu, daß im Regime 1 die Centerkonfiguration für ein System mit ungerader Teilchenzahl und $S_z = -1/2$ bei Erniedrigung des Magnetfelds in eine Centerkonfiguration mit $S_z = -3/2$ übergeht (Kreise in Regime 1). Die Centerkonfiguration ist durch einen mit zwei Spin-down-Elektronen polarisierten Rand gekennzeichnet (Abbildung 3.4). Für gerade Elektronenzahlen bleibt die Centerkonfiguration aus Regime 0 weiterhin GZ, die Randkonfiguration ändert sich wie oben beschrieben von einem $\nu = 2$ -Droplet in eine Randkonfiguration mit $S_z = -1$.

Das vorgestellte Konzept läßt sich leicht auf weitere Spinfliplinien bzw. höhere Regimes erweitern. Bei jedem Überschreiten einer Spinfliplinie ändern sich abwechselnd je ein GZ für gerade und ungerade Teilchenzahlen in der Umgebung der $\nu = 2$ -Linie, gleichzeitig wächst die Polarisierung der Ränder der neuen Zustände an. Die entsprechenden Center- und Randkonfigurationen sind für gerades und ungerades N in Übersicht 3.4 nach Regimes geordnet aufgeführt.

Im Falle einer GaAs-Zeeman-Energie läßt sich prinzipiell dieselbe Klassifikation der Regimes vornehmen. Allerdings erhöhen sich in diesem Fall die kritischen Magnetfelder für die Spinflips auf einige 10T, die kritischen Teilchenzahlen auf einige 100. Daß die obige Diskussion auf Grundlage einer überhöhten Zeeman-Energie keineswegs irrelevant ist, wird sich bei Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung zeigen (vgl. Abschnitt 3.2), die zu einer Renormierung der kritischen Parameter (N_c , $B_{\nu=2}$, B_1 , B_2) führt.

In Abbildung 3.5 ist das Zustandekommen der $\nu = 2$ -Linie im CB-Spektrum, d.h. im chemischen Potential, schematisch skizziert. In (a) werden die GZ-Energien ei-

	Centerkonfiguration	Regime	Randkonfiguration	Regime
(a) N gerade	$\downarrow$ ↑↑ ↑↑ ↑↑ ↓↓ — $S_z = -1$	0, 1	— ↑↑ ↑↑ ↑↑ ↑↑ — $S_z = 0$	0
	$\downarrow$ ↑↑ ↑↑ ↑↓ ↓↓ — $S_z = -2$	2, 3	— ↑↑ ↑↑ ↑↓ ↓↓ — $S_z = -1$	1, 2
	$\downarrow$ ↑↑ ↑↓ ↓↓ ↓↓ — $S_z = -3$	4, 5	— ↑↑ ↑↓ ↓↓ ↓↓ — $S_z = -2$	3, 4
	$\downarrow$ ↑↑ ↓↓ ↓↓ ↓↓ — $S_z = -4$	6, 7	— ↑↑ ↓↓ ↓↓ ↓↓ — $S_z = -3$	5, 6
(b) N ungerade	$\downarrow$ ↑↑ ↑↑ ↑↑ — — $S_z = -1/2$	0	— ↑↑ ↑↑ ↑↑ ↓ — $S_z = -1/2$	0, 1
	$\downarrow$ ↑↑ ↑↑ ↑↓ ↓ — $S_z = -3/2$	1, 2	— ↑↑ ↑↑ ↑↓ ↓ — $S_z = -3/2$	2, 3
	$\downarrow$ ↑↑ ↑↓ ↓↓ ↓ — $S_z = -5/2$	3, 4	— ↑↑ ↑↓ ↓↓ ↓ — $S_z = -5/2$	4, 5
	$\downarrow$ ↑↑ ↓↓ ↓↓ ↓ — $S_z = -7/2$	5, 6	— ↑↑ ↓↓ ↓↓ ↓ — $S_z = -7/2$	6, 7

ABBILDUNG 3.4: GZe entlang der $\nu = 2$ -Linie, klassifiziert nach der Parität der Elektronenzahl N , Center- und Randkonfigurationen, Spin S_z und Regimes. Die Zustände mit wachsender Polarisierung der Ränder können aus dem Einteilchen-Bild (Abbildung 3.2) abgelesen werden. Dabei sind nur die Zustände des LLLs und der Zustand $|1, 0\rangle$ des zweiten LLs relevant. Aus Darstellungsgründen wurden für alle Konfigurationen zehn bzw. neun Teilchen verwendet. Für höhere Teilchenzahlen sind unter Beibehaltung der Ränder Spinsingulett-Paare von Elektronen im LLL zu ergänzen.

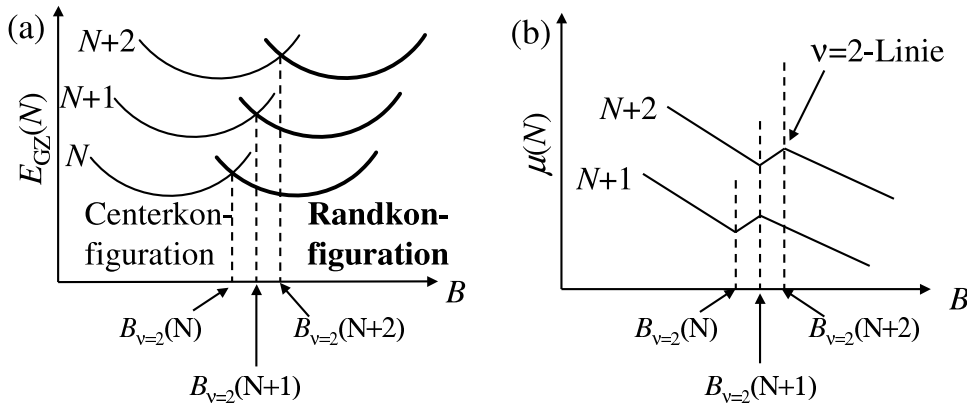


ABBILDUNG 3.5: Entstehung der $\nu = 2$ -Linie. (a) zeigt die Kuspens in den GZ-Energien als Folge des Übergangs von einer Center- auf eine Randkonfiguration mit steigendem Magnetfeld. Dabei verschieben sich die Übergänge mit wachsendem N zu höherem B ($B_{\nu=2}(N) < B_{\nu=2}(N+1) < B_{\nu=2}(N+2)$). Im chemischen Potential $\mu(N) = E_{GZ}(N) - E_{GZ}(N-1)$ folgt daraus eine charakteristische Struktur, bestehend aus einem nach unten und oben zeigenden Peak (b).

nes Vielteilchen-Systems an der $\nu = 2$ -Linie gezeigt. Die ausgeprägte Kuspens entsteht durch den Übergang der Centerkonfiguration in die Randkonfiguration, unabhängig von der Parität der Elektronenzahl oder dem Regime. Wesentlich ist nur der Inter-LL-Transfer des letzten Centerelektrons aus dem Zustand $|1, 0\rangle$ (des zweiten LLs) an den Rand in das LLL, der mit einer entsprechend großen Energiedifferenz verbunden ist. (Weitere Übergänge mit steigendem Magnetfeld (Randrekonstruktionen) finden im LLL statt. Da dann die Energiedifferenzen kleiner sind, sinkt auch die entsprechende Kuspenshöhe.) Außerdem wächst mit steigender Teilchenzahl gleichzeitig das kritische Magnetfeld. Im chemischen Potential $\mu(N+1) = E_{GZ}(N+1) - E_{GZ}(N)$ entsteht folglich die charakteristische Struktur der $\nu = 2$ -Linie mit den beiden Peaks: Der nach unten zeigende Peak in $\mu(N+1)$ ist Folge der Kuspens im N -Elektronen-System, der nach oben zeigende hat seinen Ursprung im $N+1$ -Teilchen-System. Aufgrund der Unempfindlichkeit für unterschiedliche Regimes lassen sich anhand der Peakstruktur des CB-Spektrums keine Übergänge in den beteiligten Konfigurationen identifizieren.

Wird die Tunnelspektroskopie jedoch im Regime spin-polarisierter Injektion/Detektion²⁶ durchgeführt, lassen sich Zusatzinformationen aus der Amplitude der CB-Peaks gewinnen. Ciorga et al.^{24,25} erkannten, daß bei angelegtem Magnetfeld die in den Dot injizierten Elektronen hauptsächlich (spin-down)-polarisiert sind. Die Ursache dieser spin-polarisierten Injektion ist in der durch Austauscheffekte überhöhten Spinaufspaltung der magnetischen Randzustände des 2DEGs in den Source- und Drain-Kontakten des Dots zu suchen.^{25,59,142} Der Effekt auf die Amplituden ist durch die elektronischen GZ-Konfigurationen zweier aufeinanderfolgender Elektronenzahlen N und $N+1$ bestimmt. Wenn für die Differenz der Gesamtspins $S_z(N+1) - S_z(N) \neq -1/2$ gilt, fällt die Stromamplitude nahezu auf Null, selbst wenn der räumliche Überlapp groß sein sollte.^{24,25,59,142} Somit stellt CB-Spektroskopie gleichzeitig auch Spin-Blockade-(SB)-Spektroskopie dar.^{24,25,59,142} Ein weiterer Faktor für die

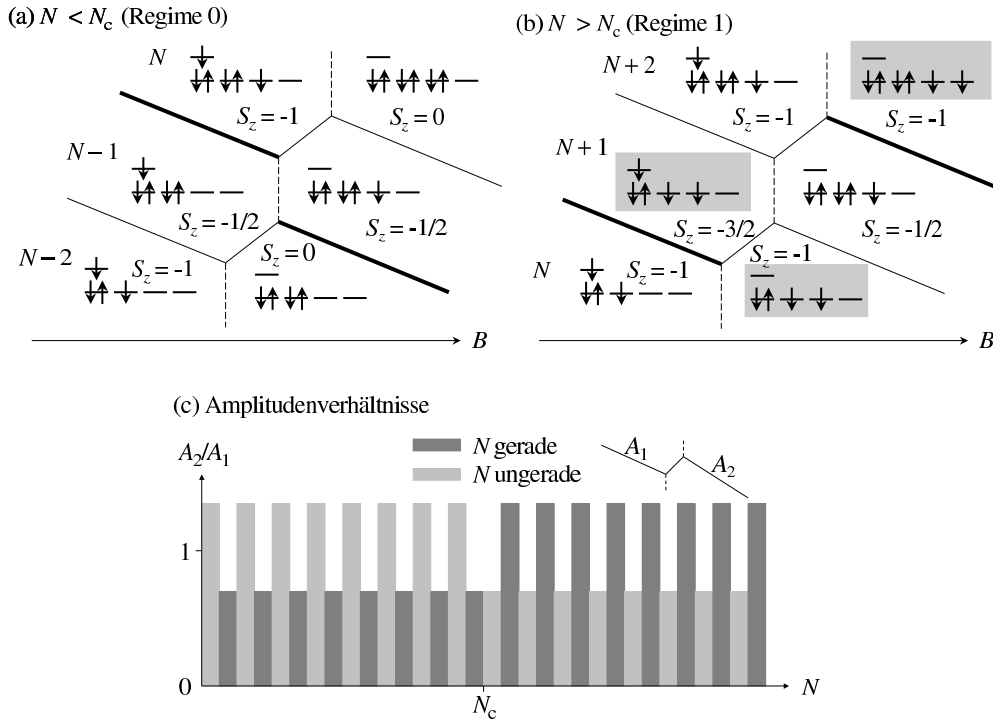


ABBILDUNG 3.6: GZ-Konfigurationen und Amplituden entlang der $\nu = 2$ -Linie in den Regimes 0 ($N < N_c$) (a) und 1 ($N > N_c$) (b). Dicke (dünne) Linien symbolisieren große (kleine) Stromamplituden; gestrichelte Linien stehen für GZ-Übergänge. (c) zeigt das Amplitudenverhältnis rechts und links der $\nu = 2$ -Linie mit steigender Teilchenzahl. Mit dem Überschreiten einer kritischen Teilchenzahl N_c beim Wechsel von Regime 0 nach 1 ändert sich die Amplitudenmodulation. Dafür verantwortlich sind die neuen GZe im Regime 1, die grau unterlegt sind.

Größe der Tunnelmatrixelemente ist der räumliche Überlapp der Wellenfunktionen des Dots mit denen der Reservoirs. Zusammen mit der SB-Bedingung können wir nur dann eine große Amplitude erwarten, wenn ein Spin-down-Elektron durch einen Randzustand des Dots tunnelt. In den anderen Fällen (ein Spin-down-Elektron tunnelt durch einen Zustand im Dotzentrum, ein Spin-up-Elektron tunnelt durch einen Zustand im Dotzentrum oder einen Randzustand) ist die Höhe der CB-Peaks klein.

Wir wollen nun den Einfluß der verschiedenen Konfigurationen entlang der $\nu = 2$ -Linie auf die Amplitudenhöhe des CB-Spektrums untersuchen. Wir beginnen mit den Konfigurationen entlang der $\nu = 2$ -Linie, wie sie im Regime 0, d.h. für $N \leq N_c$, zu finden sind. In Abbildung 3.6(a) sind die entsprechenden Zustände für drei aufeinanderfolgende Elektronenzahlen zusammen mit der charakteristischen Form der CB-Peaks dargestellt. Die Amplitudenstärke ist durch die Linienbreite der CB-Peaks gekennzeichnet; aufgrund unserer hauptsächlich qualitativen Aussagen zur Amplitudenhöhe unterscheiden wir nur zwei Amplitudenstärken.

Beginnen wir mit einem System mit einer geraden Elektronenzahl $N - 2$ im Regime 0. Für kleine Magnetfelder wird ein Spin-down-Elektron zur Centerkonfiguration des $N - 2$ -Elektronen-Droplets mit $S_z = -1$ addiert. Das resultierende $N - 1$ -System hat

aber einen GZ mit $S_z = -1/2$. Damit ist die SB-Bedingung erfüllt, und die Amplitude ist klein. Nach dem GZ-Übergang des $N - 2$ -Teilchen-Systems liegt für mittelgroße Magnetfelder ein $\nu = 2$ -Droplet mit $S_z = 0$ vor. Jetzt ist zwar die SB aufgehoben, aber das Elektron tunnelt durch einen Zustand im Dotzentrum. Aufgrund des geringen räumlichen Überlapps ist die zugehörige Amplitude wiederum klein. Für große Magnetfelder hat auch das $N - 1$ -Elektronen-System den Übergang des Centerlektrons an den Rand vollzogen. Da sich dabei der Spin $S_z = -1/2$ nicht geändert hat, liegt bei Addition des Spin-down-Elektrons zum $\nu = 2$ -Droplet keine SB vor, ferner erfolgt das Tunneln durch einen Randzustand, was eine hohe Amplitude zur Folge hat.

Bei der Addition eines weiteren Elektrons zu $N - 1$ Elektronen lassen sich für die drei Magnetfeldbereiche ähnliche Argumente anwenden. Für kleines B tunnelt ein Spin-down-Elektron mit großer Amplitude durch einen Randzustand. Im mittleren Bereich reduziert der geringe räumliche Überlapp die Peakhöhe, und für große Magnetfelder bleibt die Amplitude wegen SB klein.

Betrachten wir jetzt das SB-Spektrum im Regime 1, d.h. nach dem Zusammenbruch des $\nu = 2$ -Droplets als GZ. Die zugehörigen Konfigurationen sind wie für Regime 0 in Abbildung 3.6(b) dargestellt. Im Vergleich zu Regime 0 treten zwei neue Konfigurationen auf: Für gerades N liegt statt des unpolarisierten $\nu = 2$ -Droplets eine spinpolarisierte Randkonfiguration vor, für ungerades N hat sich die Centerkonfiguration geändert ($S_z = -3/2$ statt $S_z = -1/2$). Die Folge dieser neuen Konfigurationen ist, daß die SB-Bedingung jeweils im anderen Magnetfeldbereich vorliegt, wie bei Wiederholung obiger Argumente leicht einzusehen ist. Trägt man das Verhältnis der Amplituden rechts und links der $\nu = 2$ -Linie auf, so ist die Umkehrung der Amplitudenmodulation deutlich zu erkennen (Abbildung 3.6(c)). Damit ermöglicht die aus der SB extrahierte Zusatzinformation die Detektion des Zusammenbruchs des $\nu = 2$ -Droplets, wie sie rein aus dem CB-Spektrum unmöglich wäre.

Die Diskussion der Amplituden kann (zumindest im nicht-wechselwirkenden System) auf höhere Regimes erweitert werden. Es zeigt sich, daß alle Regimes gleicher Parität das gleiche Amplitudenmuster aufweisen. Die Einführung der Wechselwirkung (vgl. Abschnitt 3.2) läßt aber am Sinn eines solchen Vorhabens zweifeln.

Es sei noch erwähnt, daß wir in einem effektiven Einteilchen-Bild für das wechselwirkende System die obige Argumentation für die Amplitudengröße übernehmen können, falls wir die besetzten Zustände in den Konfigurationen in Abbildung 3.4 als Quasiteilchen-Zustände in den entsprechenden Spin- und Drehimpulsunterräumen auffassen.

3.2 Mean-Field-Rechnungen

Im vorangegangenen Abschnitt konnten wir das qualitative Verhalten der Amplitudenmodulation auf Grundlage des nicht-wechselwirkenden Systems mit überhöhter Zeeman-Energie beschreiben. Zunächst soll kurz motiviert werden, warum wir ein ähnliches Verhalten für das wechselwirkende System erwarten. Wie zuvor gezeigt wurde, ist die $\nu = 2$ -Phase im nicht-wechselwirkenden System (Abbildung 3.2) für eine gerade Zahl von Elektronen durch eine Center- und Randkonfiguration mit jeweils $S_z = -1$ beschränkt (Abbildung 3.2). Im Rahmen eines effektiven Einteilchen-Bildes

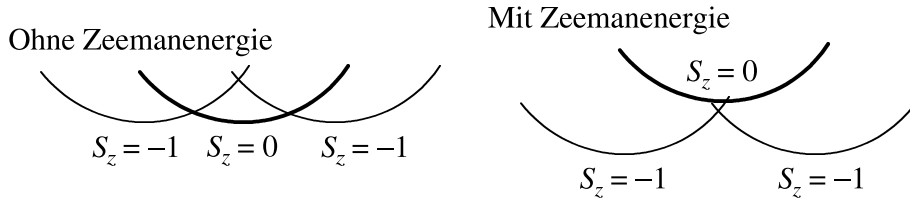


ABBILDUNG 3.7: Zusammenbruch einer unpolarisierten GZ-Phase. Ist diese Phase von zwei partiell polarisierten Konfigurationen begrenzt, verschwindet sie mit steigender Zeeman-Energie.

spielen beim Anschalten der Wechselwirkung zwei Effekte eine Rolle: Der Abstand der Niveaus verringert sich mit steigender Teilchenzahl des Systems, und durch Austauscheffekte werden polarisierte Zustände zunehmend energetisch bevorzugt im Sinne einer verallgemeinerten Hundschen Regel.¹⁴⁹ Beide Effekte zusammen können zu der in Abbildung 3.7 beschriebenen Situation führen, wo der unpolarisierte Zustand durch die zwei benachbarten spin-polarisierten Zustände als GZ verdrängt wird. Dieses Phänomen, das wir zuvor durch eine überhöhte Zeeman-Energie simulierten, soll nun im wechselwirkenden System mit Hilfe von Hartree-Fock-(HF)- und SDFT/LSDA-Rechnungen untersucht werden.

3.3 Hartree-Fock-Rechnungen

Als erster Zugang zum GZ-Phasendiagramm des wechselwirkenden Systems wurden spin- und space-restricted HF-Methoden verwendet. Zu diesem Zweck entwickeln wir die HF-Wellenfunktionen $|p, l, \sigma\rangle$ (mit der radialen Quantenzahl p , dem Drehimpuls l und dem Spin in z -Richtung σ) als Linearkombination von FD-Zuständen mit gleichem Drehimpuls und Spin

$$|p, l, \sigma\rangle = \sum_{n_+, n_-}^{n_+ - n_- = l} \alpha_{pl, n_+ n_-}^{(\sigma)} |n_+, n_-, \sigma\rangle \quad (3.1)$$

und lösen die HF-Schrödinger-Gleichung für die Koeffizienten $\alpha_{pl, n_+ n_-}^{(\sigma)}$

$$\begin{aligned} \alpha_{pl, n_+ n_-}^{(\sigma)} (E_{n_+, n_-, \sigma} - \varepsilon_{p, l, \sigma}) + \sum_{n'_+, n'_-}^{n'_+ - n'_- = l} \alpha_{pl, n'_+ n'_-}^{(\sigma)} \sum_{p'l'\sigma'} f_{p'l'\sigma'} \sum_{n''_+, n''_-}^{n''_+ - n''_- = l'} |\alpha_{p'l', n''_+ n''_-}^{(\sigma)}|^2 \times \\ \times (\langle n_+ n_-, n''_+ n''_- | W | n''_+ n''_-, n'_+ n'_- \rangle - \delta_{\sigma\sigma'} \langle n_+ n_-, n''_+ n''_- | W | n'_+ n'_-, n''_+ n''_- \rangle) = 0 \end{aligned} \quad (3.2)$$

selbstkonsistent in den jeweiligen Unterräumen mit Drehimpuls $l = n_+ - n_-$ und Spin σ . Die Besetzungszahlen $f_{pl\sigma} = 0, 1$ beschreiben die Besetzung der HF-Niveaus $|p, l, \sigma\rangle$ mit Elektronen; für ihre Summe gilt $\sum_{p, l, \sigma} f_{pl\sigma} = N$.

Um die in Abbildung 3.4 beschriebenen Kandidaten für GZe zu testen, werden die Besetzungszahlen $f_{pl\sigma}$ entsprechend den elektronischen Konfigurationen konstant gewählt, so daß jeweils die energetisch niedrigsten Zustände in den Spin- und

Drehimpulsunterräumen besetzt sind. Dann kann die HF-Slater-Determinante unter Verwendung von Erzeugern $\tilde{c}_{p,l,\sigma}^\dagger$ für HF-Einteilchen-Zustände in der Form

$$|\Psi\rangle_{\text{HF}} = \prod_{p,l,\sigma} (\tilde{c}_{p,l,\sigma}^\dagger)^{f_{p,l,\sigma}} |0\rangle \quad (3.3)$$

geschrieben werden. Nach der iterativen Lösung des HF-Formalismus berechnet sich die HF-GZ-Energie als Erwartungswert des wechselwirkenden Systems $E_{\text{GS}} = {}_{\text{HF}}\langle\Psi|H|\Psi\rangle_{\text{HF}}$.

3.3.1 Hartree-Fock-Rechnungen in den zwei niedrigsten Landau-Niveaus

Dieser Abschnitt ist der Untersuchung des prinzipiellen Einflusses der Coulomb-Wechselwirkung auf ein durch die Parameter $\hbar\omega_0 = 6$ meV und $E_z/B = 0.0254$ meV/T ($g = -0.44$) definiertes System in der HF-Näherung gewidmet.[‡] Dabei werden die klassische Abstoßung und Austauscheffekte der Coulomb-Wechselwirkung berücksichtigt und eine Mischung der zwei untersten LLs zugelassen.[§]

Zur Berechnung der GZ-Phasendiagramme in Abbildung 3.8 wurden alle in Abbildung 3.4 gezeigten Konfigurationen getestet. Für gerade Elektronenzahlen finden wir den Zusammenbruch der $\nu = 2$ -Phase bei $N = 20$ Elektronen. Im Vergleich zum nicht-wechselwirkenden System (mit $E_z/B = 0.0254$ meV/T) sind hier die kritische Elektronenzahl N_c und das kritische Magnetfeld B_c durch die Coulomb-Wechselwirkung, insbesondere durch Austauscheffekte, drastisch verringert. Allerdings sind (strenggenommen) die höher polarisierten Phasen nicht so angeordnet, daß das System die Umkehrung der Amplitudenmodulation zeigen würde. Die Voraussetzung dafür wäre ein direkter GZ-Übergang an der $\nu = 2$ -Linie von der Center- in die Randkonfiguration (beide mit $S_z = -1$) unter Auslassung der $\nu = 2$ -Phase. Wie jedoch aus Abbildung 3.8(a) deutlich wird, findet gleichzeitig mit dem Zusammenbruch des $\nu = 2$ -Droplets bei $N = 20$ ein Übergang in den Centerkonfigurationen von einem $S_z = -1$ - zu einem $S_z = -2$ -Zustand statt. Verglichen mit dem nicht-wechselwirkenden Bild ist dieser Übergang zu viel kleineren Magnetfeldern verschoben, was auf Austauscheffekte des Centerelektrons mit den Randelektronen zurückzuführen ist, die deren Polarisierung begünstigen. Somit liegt keine vorteilhafte Anordnung der Phasen im Sinne von Regime 1 vor. Im Falle der ungeraden Elektronenzahlen (Abbildung 3.8(b)) finden sich die gewünschten Kombinationen von GZen bei $N = 19, 21$.

Die charakteristische Umkehrung der Amplitudenmodulation, wie sie durch das nicht-wechselwirkende Bild nahegelegt wird, tritt nicht auf. Der Grund für dieses Verhalten des Systems ist die Überschätzung des Austauschs in der HF-Methode.⁵⁹ Dadurch wird die GZ-Energie der spin-polarisierten $S_z = -2$ -Konfiguration künstlich gegenüber der GZ-Energie der $S_z = -1$ -Phase abgesenkt, und der GZ-Übergang tritt zu

[‡]Für kleinere Confinement-Potentiale schrumpft die $\nu = 2$ -Phase in HF oder sie verschwindet komplett.

[§]Für jeden Spin- und Drehimpulsunterraum stehen genaugenommen zwei Zustände zur Verfügung, d.h. für Drehimpuls $l = 1$ wird auch ein Zustand aus dem dritten LL, nämlich $|2, 1\rangle$ herangezogen.

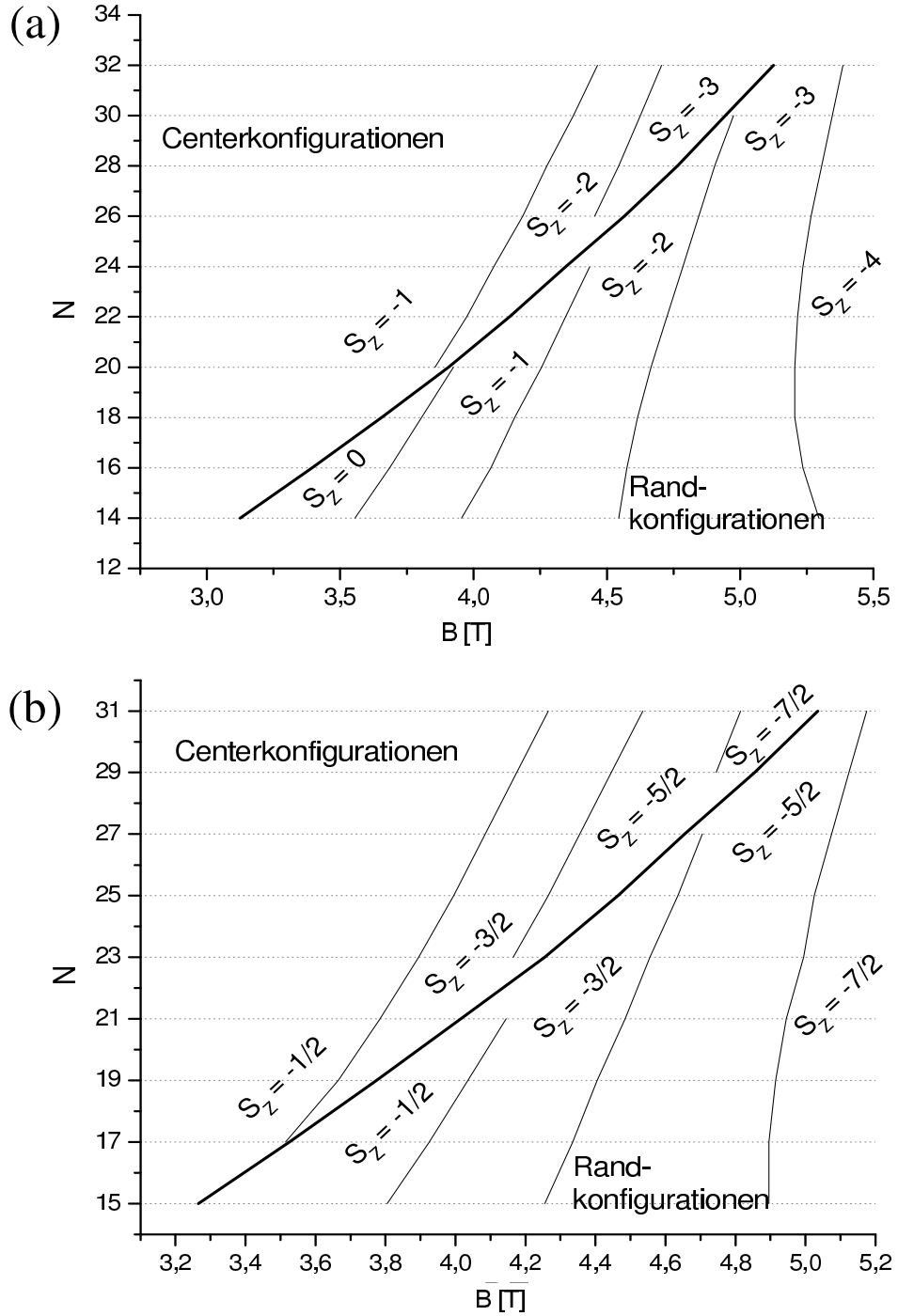


ABBILDUNG 3.8: HF-GZ-Phasendiagramme ((a): N gerade, (b): N ungerade) für $\hbar\omega_0 = 6\text{meV}$ und $E_z/B = 0.0254\text{meV/T}$ ($g = -0.44$). Die fett gedruckten Linien kennzeichnen die $\nu = 2$ -Linien, d.h. den Übergang von den Center- auf die Randkonfigurationen mit steigendem Magnetfeld. Die sich ändernden GZ-Konfigurationen können mit Hilfe des Spins S_z anhand der Übersicht in Abbildung 3.4 eindeutig identifiziert werden.

früh auf. Korrelationen können jedoch, wie wir im nächsten Abschnitt sehen werden, diesem Effekt entgegenwirken und Zustände mit geringerer Spin-Polarisation stabilisieren. Die nachfolgenden GZ-Übergänge für $N \geq 21$, die zu immer höher polarisierten GZen entlang der $\nu = 2$ -Linie führen, sind im Gegensatz zum nicht-wechselwirkenden Fall nicht geordnet. Damit ergibt sich aus der HF-Rechnung eine unsystematische Modulation des Amplitudenmusters.

Am Ende dieses Paragraphen soll noch angemerkt werden, daß eine auf das LLL reduzierte HF-Rechnung einen analytischen Zugang ermöglicht¹⁷⁴, weil sich unter dieser Einschränkung die Wechselwirkungseffekte auf die Berechnung von Erwartungswerten des Coulomb-Potentials mit den ungestörten Wellenfunktionen zurückführen lassen. Das qualitative Verhalten der HF-Ergebnisse bleibt jedoch davon unbeeinflusst. Die Unterschiede liegen darin, daß im Falle des LLL die kritischen Elektronenzahlen bei höheren und die kritischen Magnetfelder bei niedrigeren Werten liegen.¹⁷⁴

3.4 Ergebnisse der Spin-Dichtefunktional-Theorie-Rechnungen

Viele theoretische Untersuchungen von GZ-Eigenschaften von QDs basieren auf DFT-Methoden.^{40,63,86,131,139,149,150,172,175} In der SDFT spielen nicht nur Austauscheffekte, sondern auch Korrelationseffekte eine Rolle, d.h. im Gegensatz zu HF können auch unpolarisierte Zustände ihre GZ-Energie absenken. Für die folgenden Ergebnisse aus DFT-Rechnungen berücksichtigten wir in der Einteilchen-Basis 10 LL. Da der Selbstkonsistenzzyklus der DFT nicht unwesentlich davon abhängt, daß für die GZ-Dichte genügend Variationsfreiheit besteht, ist eine hinreichend große Basis entscheidend. Für die in die LDA eingehende Austausch-Korrelations-Energiedichte verwenden wir die auf Tanatar & Ceperley (1989¹⁵³) zurückgehende Parametrisierung.

Den SDFT-Rechnungen wurde ein Confinement-Potential von $\hbar\omega_0 = 1$ meV zugrunde gelegt, das sich an dem experimentell beobachteten Wert orientiert.²⁶ Konkret wurden zwei Rechnungen durchgeführt: eine mit normaler Zeeman-Energie (Abbildung 3.9) und eine mit künstlich erhöhter Zeeman-Energie (Abbildung 3.10).

Konzentrieren wir uns zunächst auf die ungeraden Elektronenzahlen: Verglichen mit HF-Rechnungen wurde im Falle der GaAs-Zeeman-Energie der Bereich der günstigen GZ-Kombinationen auf fünf Elektronen (43 bis 51) ausgedehnt, für die erhöhte Zeeman-Energie sogar auf sieben Elektronen (35 bis 47). Für gerade Elektronenzahlen findet der Zusammenbruch der $\nu = 2$ -Phase als GZ-Konfiguration bei $N_c = 48$ für normale bzw. 38 für überhöhte Zeeman-Energie statt.[¶] Abbildung 3.9 zeigt die Anordnung der Phasen im Falle der GaAs-Zeeman-Energie. Eine günstige Anordnung der Phasen liegt genaugenommen nicht vor. Allerdings ist die Bedeutung der Zwischenphasen mit $S_z = -2$ in der Centerkonfiguration für $N = 50$ und mit $S_z = 0$ bei $N = 48$ in der Randkonfiguration praktisch vernachlässigbar, da sie kaum aufgelöst werden können. Damit läßt sich die geänderte Amplitudenmodulation nur für die Übergänge zwischen 47 und 51 vorhersagen. Es ist aber möglich, die unvorteilhafte Phasenkonstellation durch Erhöhung der Zeeman-Energie entscheidend zu verbessern (Abbildung 3.10 (a)). Dieser Effekt ist zwar absolut gesehen klein, wirkt sich aber

[¶]Mit höherer Confinement-Energie steigt N_c schnell an auf $N_c \geq 100$.

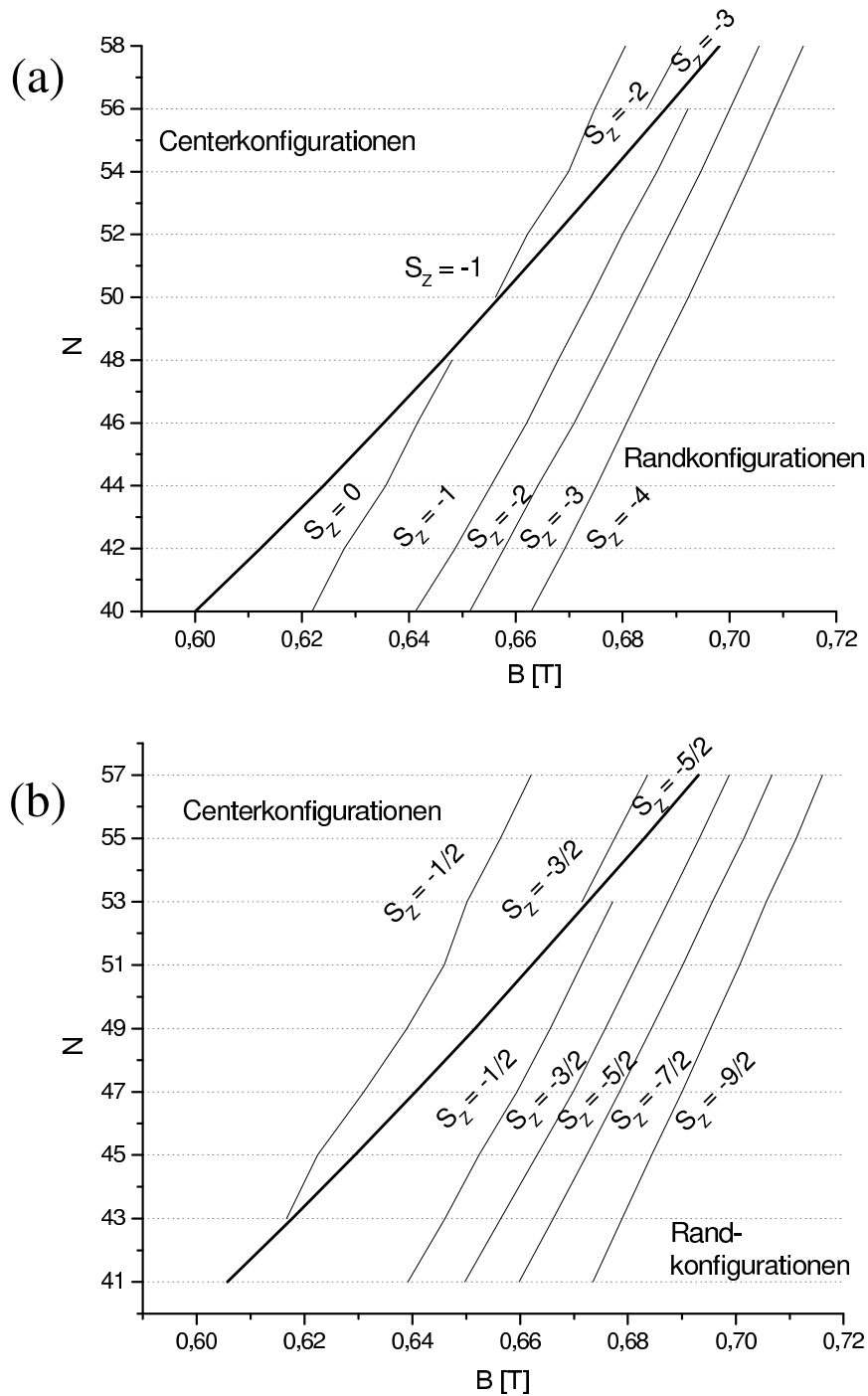


ABBILDUNG 3.9: SDFT/LSDA-GZ-Phasendiagramme ((a): N gerade, (b): N ungerade) für $\hbar\omega_0 = 1\text{meV}$ und $E_z/B = 0.0254\text{meV/T}$ ($g = -0.44$).

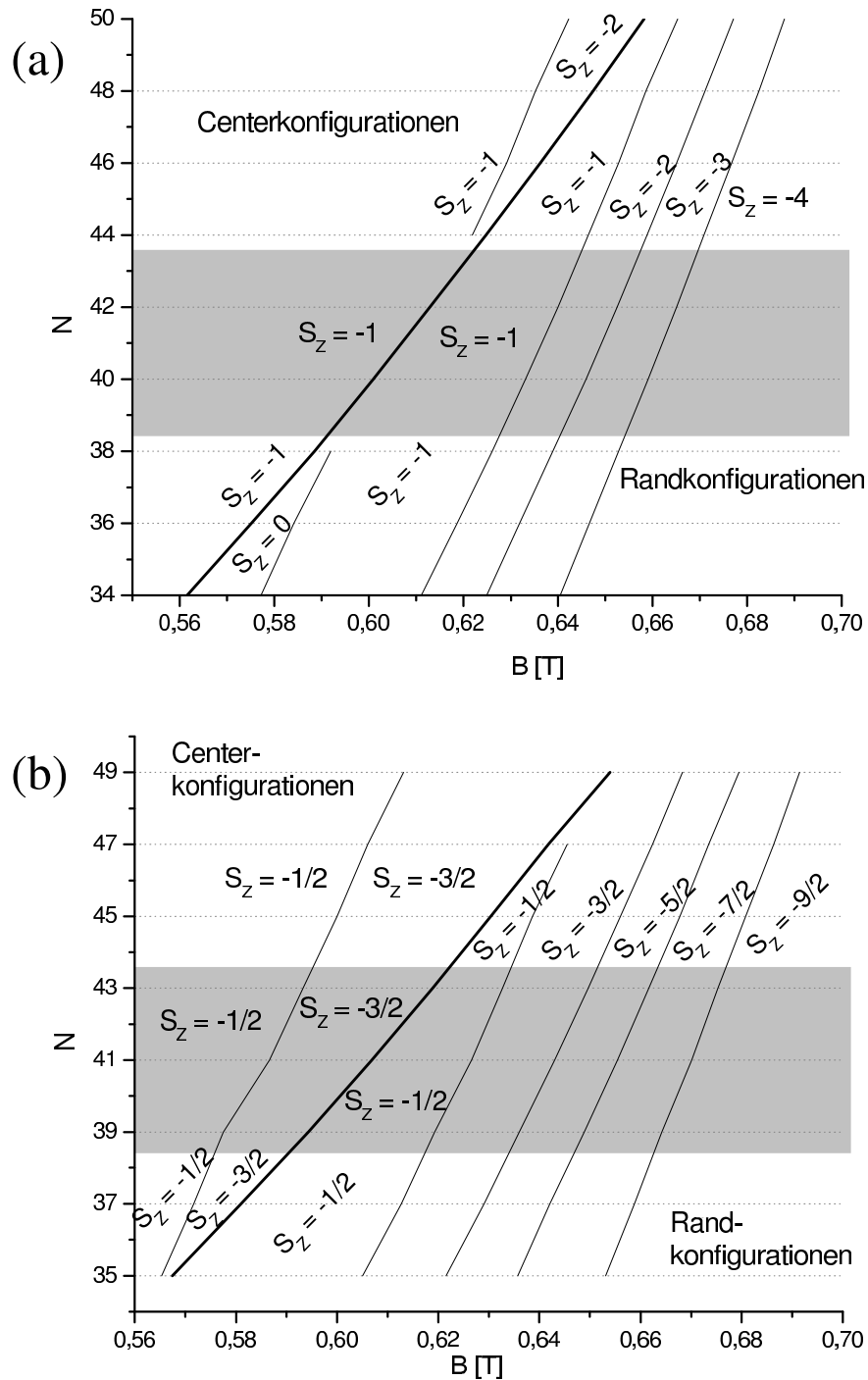


ABBILDUNG 3.10: SDFT/LSDA-GZ-Phasendiagramme ((a): N gerade, (b): N ungerade) für $\hbar\omega_0 = 1\text{meV}$ und $E_z/B = 0.0508\text{meV/T}$ ($g = -0.88$). Die schattierten Flächen kennzeichnen die Teilchenzahlen, bei denen die Umkehrung der Amplitudenmodulation auftritt, d.h. entlang der $\nu = 2$ -Linie liegen die Konfigurationen aus Abbildung 3.6(b) vor.

dennoch merklich auf das Phasendiagramm aus, da die Differenzen der GZ-Energien in der gleichen Größenordnung liegen. Durch die Betonung der Einteilchen-Energien des wechselwirkenden Systems nähert man sich an das nicht-wechselwirkende System (Abbildung 3.2) an, in dem die ersten Übergänge in den Center- und Randkonfigurationen klar getrennt sind. Zusammenfassend erhält man eine stabile Umkehrung der Amplitudenmodulation von $N = 38$ bis 43. (Dieselbe Maßnahme, die Erhöhung der Zeeman-Energie, zeigt in HF-Rechnungen jedoch keine Wirkung.)

Wir konstatieren, daß die Umkehrung der Amplitudenmodulation ein Effekt ist, der empfindlich vom Gleichgewicht zwischen Austausch- und Korrelationseffekten abhängt. Diese Balance ist am besten im Fall der DFT gewahrt, obwohl hier die geänderte Amplitudenmodulation nur mit Hilfe einer leicht erhöhten Zeeman-Energie zu erreichen ist. Diese Korrektur deutet darauf hin, daß Austauscheffekte in SDFT möglicherweise unterschätzt werden. Andererseits könnte bei den vorliegenden Rechnungen ein vielleicht entscheidender Beitrag von der Vortizitätsabhängigkeit der XC-Energiedichte kommen, die aus den in Kapitel 2 diskutierten Gründen unberücksichtigt geblieben ist.

3.5 Experimentelle Ergebnisse

In den vergangenen zehn Jahren sind CB-Spektroskopie-Techniken zu einer Standardmethode zur Untersuchung der elektronischen Eigenschaften von QDs gereift.^{4,11,25,59,60,70,76,78,87,107,117,142,154,179} CB-Peaks treten genau dann auf, wenn das chemische Potential des Dots mit den Fermi-Niveaus von Source und Drain übereinstimmt. Ändert sich der GZ des Dots (und damit sein Gesamtspin) durch Anlegen eines Magnetfelds senkrecht zur Dotebene, so äußert sich dies in Kuppen in der Position des CB Peaks.^{4,11,25,59,60,70,76,78,87,107,117,142,154,179} Zusätzlich kann der Informationsgehalt der Amplituden ausgewertet werden. So werden für irreguläre QDs mit Hunderten von Elektronen Fluktuationen in CB-Peaks zur Untersuchung von Chaos herangezogen, da die Amplitude sinkt, falls der Überlapp des GZs mit den Kontakten reduziert ist.^{23,45,71} Ähnliche Argumente dienten zur Erklärung des Absinkens der Amplituden an bestimmten Stellen im Additionsspektrum von mittelgroßen QDs.¹⁰⁷ Für kleinere Dots mit wenigen Elektronen wurde jedoch ausschließlich der Abstand der CB-Peaks im Additionsspektrum verwendet.^{4,11,25,59,60,70,76,78,87,107,117,142,154,155,179}

Das entsprechende SB-Experiment (Abbildung 3.11) an lateralen QDs wurde von der Quantenphysikgruppe (Andy Sachrajda, Mariusz Ciorga, Michel Pioro-Ladrière) des Institute for Microstructural Sciences des National Research Council Canada in Ottawa durchgeführt. Ciorga et al. (2002²⁶) demonstrierten an einem durch Metall-Gates definierten lateralen QD die experimentelle Kontrolle von Teilchenzahl und Spinzustand. Das Inset der Abbildung 3.11(a) zeigt die Scanning-electron microscopy-(SEM)-Aufnahme eines ähnlichen Devices, wie es auch in Referenz²⁶ verwendet wurde. Das Layout der Gates führt zu einem leicht deformierten parabolischen Potential^{26,89}, in dem die Zahl der Elektronen zwischen 50 und 1 kontrolliert werden kann.¹⁴² Die spinpolarisierte Injektion erlaubt die Auswertung der Amplitudenhöhe des CB-Spektrums unter Berücksichtigung von SB und dem räumlichen Überlapp der in die Tunnelmatrixelemente eingehenden Wellenfunktionen.

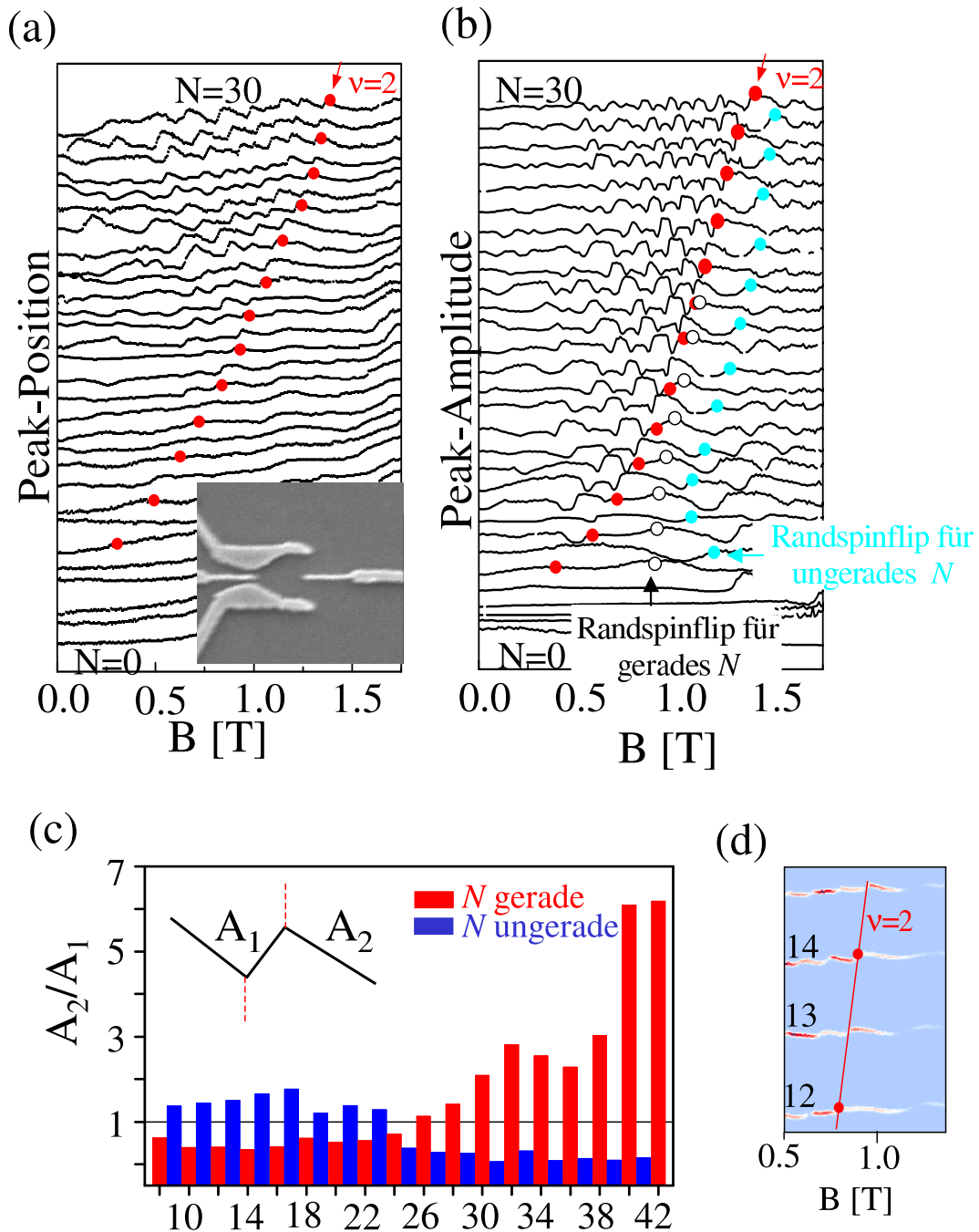


ABBILDUNG 3.11: Experimentelle Ergebnisse²⁶ für das CB-Spektrum (a) und die zugehörigen Amplituden (b). Die $\nu = 2$ -Linie ist jeweils durch rote Punkte gekennzeichnet. In (b) können zusätzlich die Randspinflips für gerades N (Kreise) und ungerades N (hellblaue Punkte) identifiziert werden. Die Spinfliplinie für gerade N schneidet die $\nu = 2$ -Linie bei ca. $N_c = 24$, was sich auch in der Umkehrung der Amplitudenmodulation (c) ausdrückt. In (c) wurde das Verhältnis A_2/A_1 der Amplituden rechts (A_2) und links (A_1) der $\nu = 2$ -Linie aufgetragen. (d) zeigt die Amplitudenstärke der CB-Spektroskopie im Falschfarbenplot. Rot kennzeichnet eine große und blau eine kleine Stromamplitude.

Ciorga et al. haben in früheren Arbeiten SB-Spektroskopie zum direkten Studium der Singulett-Triplett-Übergänge^{24,25,142} ausgenutzt, die in der Umgebung des Regimes mit Füllfaktor $\nu = 2$ in QDs mit bis zu 20 Elektronen auftreten.^{4,11,60,76,78,107,117,179}

In Abbildung 3.11(a) ist ein typisches CB-Additionsspektrum für die ersten 30 Elektronen zu sehen. Das dominierende Merkmal ist die $\nu = 2$ -Linie, die durch eine Reihe von roten Punkten und einen Pfeil gekennzeichnet ist. Das zugehörige SB-Spektrum, d.h. die Amplitude der CB-Peaks, ist in Abbildung 3.11(b) dargestellt. Es zeigt große Oszillationen im Regime $B > 0.4$ T, in dem spin-polarisierte Injektion und Detektion stattfinden. Die $\nu = 2$ -Linie (rote Punkte) ist wiederum deutlich erkennbar am kurzen Absinken der Amplitude, beginnend bei dem Übergang von fünf auf sechs Elektronen.

Bei genauerer Untersuchung wird jedoch deutlich, daß bestimmte Merkmale nur im SB-Spektrum auftauchen. Sie sind in Abbildung 3.11 durch Kreise für gerade und hellblaue Punkte für ungerade Elektronenzahlen gekennzeichnet. Die Kreise in Abbildung 3.11(b) nähern sich der $\nu = 2$ -Linie an und kreuzen sie schließlich bei einer kritischen Elektronenzahl $N_c = 24$. Die Kreise bzw. hellblauen Punkte entsprechen den ersten Spinflips für gerade und ungerade N im Zuge der Randrekonstruktion des kompakten $\nu = 2$ -QHDs. Mit zunehmendem Magnetfeld wird der Dot weiter polarisiert, bis wiederum das stabile, vollständig polarisierte $\nu = 1$ -QHD vorliegt. Obwohl es experimentell schwierig ist, die ersten Spinflips in CB-Spektroskopie aufzulösen, erlaubt der magnetische Fingerabdruck in Form eines kurzen Absinkens der Amplitude (aufgrund von geringem Überlapp und SB) die Beobachtung der Spinflips im SB-Spektrum.²⁵

Im SB-Spektrum zeigt sich auch die Umkehrung des Amplitudenmusters entlang der $\nu = 2$ -Linie bei Überschreiten der kritischen Teilchenzahl $N_c = 24$. Die Peakhöhen verhalten sich dabei genau so, wie im theoretischen Teil beschrieben. In Abbildung 3.11(c) ist das Verhältnis der Amplituden der CB-Peaks rechts und links der $\nu = 2$ -Linie als Funktion von N aufgetragen. Qualitativ stimmt es mit dem berechneten Muster überein. Der einzige Unterschied liegt in der kritischen Elektronenzahl, die mit einem experimentellen Wert von $N_c = 24$ erheblich von der theoretischen Vorhersage durch die SDFT/LSDA abweicht, obwohl die kritischen Magnetfelder durchaus in der richtigen Größenordnung liegen. Mögliche Ursachen dafür könnten eine in ihrer Stärke überschätzte Coulomb-Wechselwirkung (Abschirmung durch die Metall-Gates wurde nicht berücksichtigt) oder Änderungen des Confinement-Potentials mit steigender Elektronenzahl sein. Abbildung 3.11(d) zeigt Falschfarbenplots von vier CB-Peaks in der Umgebung der $\nu = 2$ -Linie für das Regime mit $N \leq N_c$. Dabei symbolisieren Rottöne bzw. Blautöne große bzw. kleine Amplituden.

3.6 Diskussion

Wir studierten die Stabilität des $\nu = 2$ -Spinsingulett-Droplets als Funktion der Elektronenzahl, des Magnetfelds und des Confinement-Potentials. Anhand des nicht-wechselwirkenden Systems erfolgten die Modellbildung und die Extraktion möglicher GZe in der Umgebung der $\nu = 2$ -Linie. Für das wechselwirkende System wurden die GZ-Kandidaten mit Hilfe zweier Mean-Field-Methoden, HF und SDFT/LSDA, untersucht. Mit beiden Methoden finden wir, daß die GZ-Phase des $\nu = 2$ -Droplet ab einer bestimmten Elektronenzahl N_c zusammenbricht. An ihre

Stelle treten GZe mit höherer Polarisierung. Damit verbunden sind charakteristische Signaturen (Spinflippllinien), die im Amplituden-Spektrum, nicht aber im CB-Spektrum auftreten. Die zugehörigen Strukturen im experimentellen SB-Spektrum²⁶ eines QDs wurden identifiziert. Die charakteristische Umkehrung der Amplitudenmodulation entlang der $\nu = 2$ -Linie konnte allerdings nur mit Hilfe der SDFT/LSDA reproduziert werden, was die Bedeutung der Korrelationseffekte neben den Austauschwirkungen unterstreicht. Außerdem wird die Größenordnung der kritischen Parameter nur im DFT-Zugang richtig wiedergegeben.

Ein experimentell interessantes Problem ist die Frage, ob eine erneute Umkehrung des Amplitudenverhältnisses für höhere Teilchenzahlen auftritt, wie es sich im nicht-wechselwirkenden System andeutet. Da die gemessenen SB- und CB-Spektren bei $N = 30$ Elektronen enden,²⁶ muß diese Frage vorerst unbeantwortet bleiben. Andererseits scheint ein theoretischer Zugang zur Untersuchung der Amplitudenmodulation in den Regimes 2, 3, 4,... unter Berücksichtigung der Wechselwirkung wenig aussichtsreich zu sein.

KAPITEL 4

Exakte Diagonalisierung für Quantenpunkte

Exakte Diagonalisierung (ED) war schon immer ein wichtiges Werkzeug, um die elektronischen und optischen Eigenschaften von Quantendots zu untersuchen (vgl. Referenzen^{15,28,36,57,59–61,66,67,70,100–102,109,111–113,117,122,126,137,176–179}). Dabei eröffnet die ED den Zugang sowohl zu GZ-Wellenfunktionen wie auch zu den angeregten Zuständen. Zudem können die Symmetrien des Systems weitgehend systematisch genutzt werden. Die Genauigkeit der ED ist allein durch die Beschränkung des i.a. unendlich-dimensionalen Hilbertraums auf eine endliche Basis begrenzt. Eine hinreichende Konvergenz der ED-Resultate ist somit nur für niedrige Elektronenzahlen gewährleistet.

Im Gegensatz zur ED sind andere Konzepte wie Hartree-Fock-(HF)-Rechnungen (z.B. Referenzen^{140,180}), Dichtefunktional-Theorie-(DFT)-Rechnungen (z.B. Referenzen^{8,63,86,150,172,175}) und Quanten-Monte-Carlo-(QMC)-Methoden^{13,34,42,53–55,124,146} auf die GZ-Eigenschaften (bzw. im Fall von Symmetrien auf die GZ-Eigenschaften des jeweiligen Unterraums) beschränkt. Dafür erlauben DFT und HF als effektive Einteilchen-Methoden eine Verwendung von hohen Teilchenzahlen ($N > 50$). Dieser Vorteil wird allerdings im Fall von HF durch den Verzicht auf Korrelationseffekte erkauft, in der DFT werden XC-Effekte im Rahmen der lokalen Dichtenäherung (LDA) mit Hilfe von interpolierten XC-Energien näherungsweise berücksichtigt. QMC-Rechnungen wurden für Quantendots bis zu 20 Elektronen¹²⁴ durchgeführt. Sie sind zwar für bosonische Systeme exakt, aber im Fall von Fermionen ist die Wahl der Knoten der Testwellenfunktion für die Qualität der Ergebnisse entscheidend. Zur Behandlung dieses sog. Fermion-sign problems werden in der Literatur verschiedene Verfahren diskutiert, Variational-QMC^{53–55,146}, Diffusion-QMC¹²⁴ und Multi-level-blocking³⁴, die zu vergleichbar genauen Ergebnissen führen. Allen QMC-Methoden ist gemeinsam, daß sie sehr rechenintensiv sind. Insbesondere müssen alle Erwartungswerte durch Sampling berechnet werden. Eine weitere Alternative zur Behandlung von wechselwirkenden Elektronen in QDs stellen korrelierte Basiswellenfunktionen¹⁶⁰ für das Vielteilchen-System dar, die nicht-orthogonal sind und von Variationsparametern abhängen. Diese Basis ist im Vergleich zu einer Basis von Slater-Determinanten, die dieselbe Genauigkeit liefert, kleiner, da bereits Korrelationseffekte berücksichtigt

sind. Die Berechnung der GZ-Energie umfaßt die Lösung des verallgemeinerten Eigenwertproblems sowie die Optimierung der Variationsparameter.

Um für die Verbesserung der XC-Energien entsprechende Referenzgrößen, d.h. Energien, Spin- und Stromdichten in guter Genauigkeit zu erhalten, fiel unsere Wahl auf die ED. Der Hauptvorteil dieser Methode ist die einfache Berechnung der Spin- und Stromdichten aus der GZ-Wellenfunktion.

Die Herausforderung der ED ist die mit der Fakultät* der Teilchenzahl wachsende Zahl von Slater-Determinanten, die aus einer gegebenen (abgeschnittenen) Einteilchen-Basis erzeugt werden können, was grundsätzlich zwei Ansätze zur Verbesserung der ED nahelegt. Zum einen sind programmiertechnische Aspekte zu nennen, was die effiziente Berechnung und Speicherung der dünn besetzten Hamiltonian-Matrix sowie die (iterative) Lösung des zugehörigen Eigenwertproblems betrifft. Eine effiziente Implementierung konnte durch ein mit Hilfe von OpenMP¹²¹ parallelisiertes C++-Programm realisiert werden. Allerdings soll in der vorliegenden Arbeit der Schwerpunkt auf die physikalischen Aspekte der Verbesserung gelegt werden, d.h. wir wollen untersuchen, wie sich die (nicht-trivialen) Symmetrien wie Gesamtspin oder Schwerpunkt-(CM)-Bewegung in das Konzept der ED integrieren lassen und so die effektive Matrixgröße reduzieren. In diesem Kapitel stellen wir zwei verschiedene Ansätze¹⁷³ vor und diskutieren ihre Anwendungsmöglichkeiten.

Im folgenden gehen wir immer davon aus, daß wir in einem Unterraum zu den Operatoren $\hat{L}$ und $\hat{S}_z$ arbeiten, d.h. die Slater-Determinanten der Basis sind Eigenzustände zum Drehimpuls mit Eigenwert L und zum Spin mit Eigenwert S_z .

4.1 Der Gesamtspin als gute Quantenzahl

Ausgehend von der Darstellung des Gesamtspins in zweiter Quantisierung (1.39) auf Grundlage der FD-Einteilchen-Basis

$$\hat{S}^2/\hbar^2 = N/2 + \hat{S}_z^2/\hbar^2 - \sum_{n'_+, n'_-, n_+, n_-} \hat{c}_{n'_+, n'_-, \uparrow}^\dagger \hat{c}_{n_+, n_-, \downarrow}^\dagger \hat{c}_{n'_+, n'_-, \downarrow} \hat{c}_{n_+, n_-, \uparrow} \quad (4.1)$$

entwickeln wir einen zu den Young-Tafeln⁹⁰ alternativen Zugang, der keine gruppentheoretischen Methoden erfordert und numerisch leicht implementierbar ist.

Unser Konzept beruht auf der Beobachtung, daß der Operator $\hat{S}^2$ (4.1) Teilchen mit orbitaler Quantenzahl (n_+, n_-) und Spin $\uparrow$ vernichtet und anschließend mit geflipptem Spin wieder erzeugt, d.h. die orbitale Quantenzahl (n_+, n_-) bleibt erhalten, aber der zugehörige Spin wurde geflippt. Analoges gilt für die Quantenzahl (n'_+, n'_-) . Somit ändert $\hat{S}^2$ das Muster der beteiligten orbitalen Quantenzahlen nicht. Da der Gesamtspinoperator nur Slater-Determinanten mit demselben Muster $\{n_+, n_-\}$ von orbitalen Einteilchen-Quantenzahlen koppeln kann, schlußfolgern wir, daß es möglich ist, alle Zustände mit dem gleichen Muster $\{n_+, n_-\}$ in Blöcken anzuordnen und diese einzelnen Blöcke in Eigenzustände von $\hat{S}^2$ zu drehen. Damit erhalten wir eine Vielteilchen-Basis aus Eigenzuständen zu den Operatoren $\hat{L}$, $\hat{S}_z$ und $\hat{S}^2$.

*Falls die Teilchenzahl klein gegen die Größe der Einteilchen-Basis ist.

	M=3	M=4	M=5	M=6
$S_z = 0$	$S = 0: 1$	$S = 1: 1$	$S = 0: 2, S = 1: 3,$ $S = 2: 1$	$S = 0: 5, S = 1: 9,$ $S = 2: 5, S = 3: 1$
$S_z = \pm 1$		$S = 1: 1$	$S = 1: 3, S = 2: 1$	$S = 1: 9, S = 2: 5,$ $S = 3: 1$
$S_z = \pm 2$			$S = 2: 1$	$S = 2: 5, S = 3: 1$
$S_z = \pm 3$				$S = 3: 1$

TABELLE IV: Zahl der Eigenzustände von $\hat{S}^2$ pro Block für ein Sechselektronen-System als Funktion von M und S_z .

Die Größe der Blöcke kann mit Hilfe der Kombinatorik berechnet werden: Wir geben uns eine Teilchenzahl $N = N_\uparrow + N_\downarrow$, also $S_z = (N_\uparrow - N_\downarrow)/2$,[†] und ein Muster an orbitalen Einteilchen-Quantenzahlen $\{n_+, n_-\}$, bestehend aus M verschiedenen Tupeln (n_+, n_-) vor. Aufgrund des Pauli-Prinzips gilt

$$N/2 \leq \max(N_\uparrow, N_\downarrow) \leq M \leq N. \quad (4.2)$$

Damit haben wir $N - M$ Singulett $\uparrow\downarrow$, $M - N_\downarrow$ ungepaarte Spin- $\uparrow$ -Elektronen und $M - N_\uparrow$ ungepaarte Spin- $\downarrow$ -Elektronen. Die Verteilung der Singulett ist durch das Pauli-Prinzip bestimmt, und die Zahl der Quantenzahlen, die für die ungepaarten Spins zur Verfügung steht, ist $M - (N - M)$. Somit erhalten wir die Blockgröße aus der Verteilung von $M - (N - M)$ Quantenzahlen auf die ungepaarten Spins $\uparrow$ und $\downarrow$

$$\begin{aligned} \text{Blockgröße} &= \binom{M - (N - M)}{M - N_\downarrow} \binom{M - (N - M) - (M - N_\downarrow)}{M - N_\uparrow} \\ &= \frac{(2M - N)!}{(M - N_\downarrow)!(M - N_\uparrow)!}. \end{aligned} \quad (4.3)$$

In Tabelle IV ist die Zerlegung in Eigenzustände von $\hat{S}^2$ für ein Sechselektronen-System als Funktion von M und S_z aufgeführt. Es stellt sich außerdem heraus, daß die Blöcke für die bei der ED relevanten Elektronenzahlen ziemlich klein sind. Z.B. ist die maximale Blockgröße 252 für $N = 10$ bei $M = 10$, $S_z = 0$ noch innerhalb eines vernünftigen Rahmens. Außerdem muß die Diagonalisierung für jeden Wert von M nur einmal ausgeführt werden unabhängig vom speziellen Muster $\{n_+, n_-\}$. Damit können wir z.B. die effektive Matrixgröße für $N = 6$, $S_z = 0$ von 326120 Slater-Determinanten auf 92410 für $S = 0$, 152460 für $S = 1$, 70711 für $S = 2$ und 10539 für $S = 3$ reduzieren.

4.2 Exakte Diagonalisierung in beliebigen Magnetfeldern

Abbildung 4.1 zeigt die Struktur des Programms für ED in beliebigen Magnetfeldern. Wir beginnen mit einer großzügig dimensionierten FD-Einteilchen-Basis ($n_{\max} = m_{\max} = 16$). Die zugehörigen Coulomb-Matrixelemente liegen in einer separaten Datei gespeichert mit hoher Genauigkeit vor (vgl. Anhang A). Ausgehend

[†]Bei Drehimpulsen und Spins verzichten wir auf die Angabe von $\hbar$.

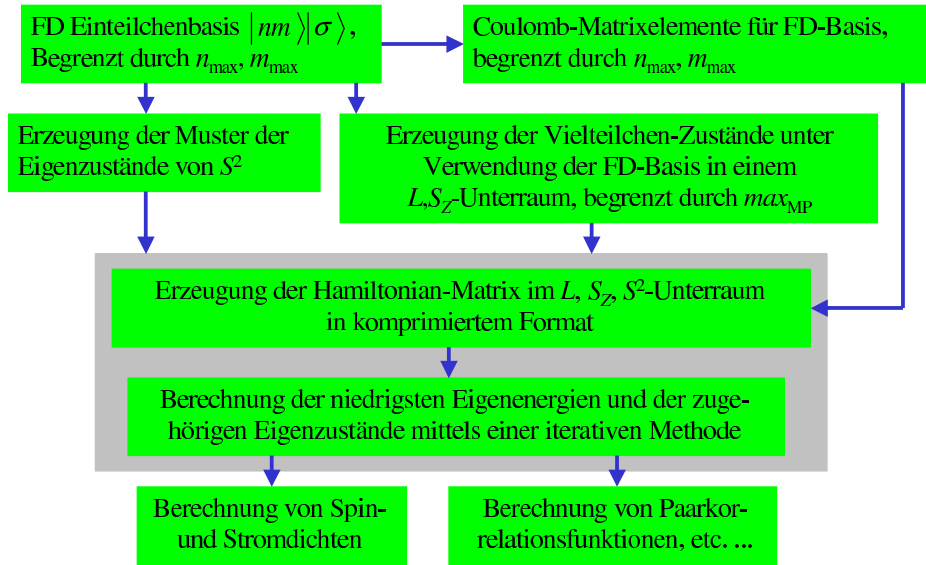


ABBILDUNG 4.1: Konzept für die ED mit Gesamtspin als guter Quantenzahl.

von der Einteilchen-Basis wird für ein N -Elektronen-System mit Drehimpuls L und Spin S_z eine Vielteilchen-Basis aus Slater-Determinanten berechnet, die eine Schalenstruktur mit hohen Entartungen aufweist. Ein Parameter bestimmt die maximale Zahl der in der ED verwendeten Slater-Determinanten; nicht-volle Schalen werden nicht berücksichtigt.

Zusätzlich garantiert die Schalenstruktur die Vollständigkeit der Blöcke für die n_+n_- -Muster, aus denen die Linearkombinationen des Gesamtspinoperators zum zugehörigen Eigenwert S berechnet werden. Nach Abschluß der Vorbereitungen ist es möglich, die Hamiltonian-Matrix des Systems in dem durch die Quantenzahlen L , S_z und S definierten Unterraum zu erzeugen. Die Matrix ist dünn besetzt, was eine Abspeicherung in komprimierter Form nahelegt.

Im folgenden Schritt wird das Eigenwertproblem mit Hilfe eines iterativen Schemas für die energetisch niedrigsten Zustände gelöst. Die nun vorliegenden Eigenenergien und Eigenfunktionen sind Grundlage für die Berechnung von Erwartungswerten wie Dichten, Stromdichten, etc.

4.2.1 Ergebnisse

In diesem Abschnitt präsentieren wir Ergebnisse für die GZe von 4, 5 und 6 Elektronen in einem Confinement-Potential von 3meV und in Magnetfeldern zwischen 0 und 3T. Dieses Regime beschreibt den Übergang vom Droplet ohne Magnetfeld zum $\nu = 2$ -QHD und dessen Rekonstruktion zum vollständig spin-polarisierten $\nu = 1$ -Droplet. Alle Rechnungen wurden mit GaAs-Parametern ($\varepsilon = 12.4$, $m^* = 0.069m_e$) durchgeführt. Bei Endergebnissen wurde auch die GaAs-Zeeman-Energie ($g = -0.44$) berücksichtigt.

Zunächst wollen wir die Genauigkeit der ED im Vergleich mit der von QMC- oder dazu äquivalenten Rechnungen betrachten. In Tabelle V sind die in der Literatur erhältlichen GZ-Energien zusammen mit denen aus der ED aufgeführt. Für 5, 6 und

N	(L, S)	$E_{\text{QMC}}[\text{meV}]$	$E_{\text{SVM}}[\text{meV}]$	$E_{\text{ED}}[\text{meV}]$	rel. Fehler der ED
4	(0, 1)	44.0586	44.0261	44.0763	$< 1.2 \cdot 10^{-3}$
4	($\pm 2, 0$)	44.5183	44.4945	44.5498	$< 1.3 \cdot 10^{-3}$
4	(0, 0)	(44.0328)	44.8004	44.8355	$< 0.8 \cdot 10^{-3}$
5	($\pm 1, 0.5$)	65.6139	65.5827	65.6488	$< 1.0 \cdot 10^{-3}$
6	(0, 0)	90.1116	90.1391	90.2383	$< 1.5 \cdot 10^{-3}$
7	($\pm 2, 0.5$)	119.0019	—	119.1426	$< 1.2 \cdot 10^{-3}$
7	(0, 0.5)	119.2877	—	119.4069	$< 1.0 \cdot 10^{-3}$
8	(0, 1)	150.4734	—	150.9415	$< 3.2 \cdot 10^{-3}$
8	($\pm 2, 1$)	150.7355	—	151.1623	$< 2.9 \cdot 10^{-3}$
8	(0, 0)	151.1149	—	151.2880	$< 1.2 \cdot 10^{-3}$
8	($\pm 2, 0$)	150.7592	—	151.4985	$< 5.0 \cdot 10^{-3}$
8	($\pm 4, 0$)	150.8540	—	151.2947	$< 3.0 \cdot 10^{-3}$

TABELLE V: Vergleich von GZ-Energien für $N = 4, 5, 6, 7, 8$ der Unterräume (L, S) bei $\hbar\omega_0 = 3.32\text{meV}$. QMC-Energien sind aus Referenz¹²⁴, Stochastic-variational-method-Energien aus Referenz¹⁶⁰. In Übereinstimmung mit Referenz¹⁶⁰ finden wir keine Verletzung der Hundschen Regel für vier Elektronen. Die Diskrepanzen für acht Elektronen werden im Text diskutiert.

7 Elektronen stimmen alle drei Methoden (QMC¹²⁴, SVM¹⁶⁰, ED) gut überein.[‡] Diskrepanzen treten allerdings bei vier und acht Elektronen auf. Für vier Teilchen finden Pederiva et al. (2000¹²⁴) im Gegensatz zu Varga et al. (2001¹⁶⁰) und ED eine Verletzung der Hundschen Regel, d.h. der GZ ist trotz halb gefüllter Schale unpolarisiert. Abweichungen von der Hundschen Regel für $N = 4$ sind aber auch schon in früheren QMC-Rechnungen¹³ dokumentiert. Dagegen weisen experimentelle Arbeiten^{8,154} wie auch verschiedene theoretische Ansätze (SDFT/LSDA⁸⁶, SVM¹⁶⁰, ED) auf deren Gültigkeit hin.

Für $N = 8$ tritt ein ähnlich geartetes Problem beim Vergleich von QMC und ED auf. Die beiden Methoden stimmen zwar darin überein, daß die Hundsche Regel gilt, aber mit Ausnahme der Konfiguration $(L, S) = (0, 0)$ sind die relativen Fehler signifikant größer. Außerdem finden wir eine unterschiedliche Reihenfolge der angeregten Zustände. Um dieses Phänomen genauer zu untersuchen, wurde ein Konvergenztest für die ED-GZ-Energien als Funktion der Abschneideenergie für die Vielteilchen-Basis durchgeführt, dessen Ergebnis in Abbildung 4.2 zu sehen ist. Abbildung 4.2 zeigt deutlich, daß gemäß ED keine Niveaukreuzung zwischen angeregten Zuständen zu erwarten ist; die Energiedifferenzen bleiben stabil. Eine Ausnahme bilden die (in ED) quasi-entarteten Zustände $(L, S) = 0, 0$ und $(-4, 0)$, deren Reihenfolge nicht endgültig bestimmt werden kann. Wir weisen aber darauf hin, daß dieselben Zustände in QMC keine Quasientartung zeigen. Ferner erlaubt eine qualitative Überlegung auf der Basis eines effektiven Einteilchen-Bildes (Abbildung 4.3) die energetische Reihenfolge aus der ED zu verstehen. Wir berücksichtigen dabei im wesentlichen Austauscheffekte durch parallele Spins und eine Absenkung von Zuständen derselben Schale mit betragsmäßig wachsendem Drehimpuls, also die entscheidenden Elemente, die auch zur

[‡]Für SVM liegen keine Werte für $N > 6$ vor.

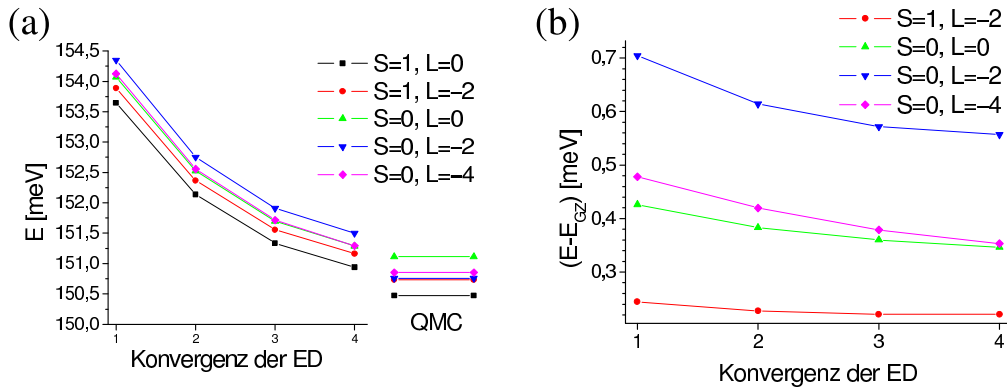


ABBILDUNG 4.2: Konvergenztest für ein System mit acht Elektronen als Funktion der Abschneideenergie für die Vielteilchen-Basis. In (a) sind die ED-Energien im Vergleich mit den QMC-Energien¹²⁴ abgebildet. (b) zeigt die Energiedifferenzen der angeregten Zustände zur GZ-Energie. Auf der Abszisse sind die Abschneideenergien für die Vielteilchen-Basis aufgetragen. 1, 2, 3, 4 bedeuten $E_{\text{cutoff}} = 19\hbar\omega_0, 21\hbar\omega_0, 23\hbar\omega_0, 25\hbar\omega_0$ bzw. eine Zahl von ca. 23000, 96000, 355000, 1160000 Slater-Determinanten.

Hundschen Regel führen. Dabei ist eine Ausrichtung der Spins energetisch vorteilhafter als eine Besetzung von Zuständen mit betragsmäßig großem Drehimpuls. Damit erhalten wir die niedrigste Energie für (b) $(L, S) = (0, 1)$, da sowohl die Spins parallel sind wie auch die energetisch günstigen Zustände mit Drehimpuls ± 2 besetzt sind. Die zweitbeste Konfiguration (c) $(L, S) = (\pm 2, 1)$ hat ebenfalls ausgerichtete Spins, allerdings ist jetzt ein Zustand mit Drehimpuls 0 besetzt. Als nächstes folgen die beiden quasientarteten Zustände (d) $(L, S) = (0, 0)$ und (f) $(L, S) = (\pm 4, 0)$. Jetzt kann die GZ-Energie nicht mehr durch parallele Spins gesenkt werden, sondern nur durch Vermeidung von Zuständen mit Drehimpuls 0. Deshalb sind die beiden zuletzt genannten Konfigurationen gegenüber (e) $(L, S) = (\pm 2, 0)$ abgesenkt. Insbesondere die energetische Anordnung der $S = 0$ Zustände in QMC erscheint vor dem Hintergrund der genannten Aspekte problematisch. Die Zuverlässigkeit der QMC-Ergebnisse für acht Elektronen darf wie im Fall der Verletzung der Hundschen Regel für $N = 4$ angezweifelt werden. Ein weiteres Indiz ist der relative Fehler der GZ-Energien im Vergleich von QMC und ED, der für alle Konfigurationen gleichmäßig ansteigen sollte, aber bei der Konfiguration $(L, S) = (0, 0)$ in der gleichen Größenordnung wie bei den niedrigeren Elektronenzahlen liegt.

Das Ziel der ED-Rechnungen war eine möglichst hohe Genauigkeit für GZ-Energien und GZ-Übergänge. Das zugrunde liegende Konzept soll anhand des Beispiels $N = 6$ illustriert werden: Zunächst werden alle Unterräume zu $S = 0, 1, 2, 3$ separat behandelt. In jedem Unterraum berechnen wir die GZ-Energien für die Drehimpulse von $L_{\nu=1} - 2 = -17$ bis 0 im ganzen Magnetfeldintervall mit mittlerer Genauigkeit, d.h. ca. 60000 Slater-Determinanten bei $S_z = 0$.[§] Abbildung 4.4(a) zeigt das Ergebnis zu $S = 0$. Alle Drehimpulse in Abbildung 4.4(a) sind mögliche GZ-Kandidaten, da sie in einem

[§]Beachte: Im Unterraum $S_z = 0$ sind alle Unterräume mit $S = 0, 1, 2, 3$ enthalten.

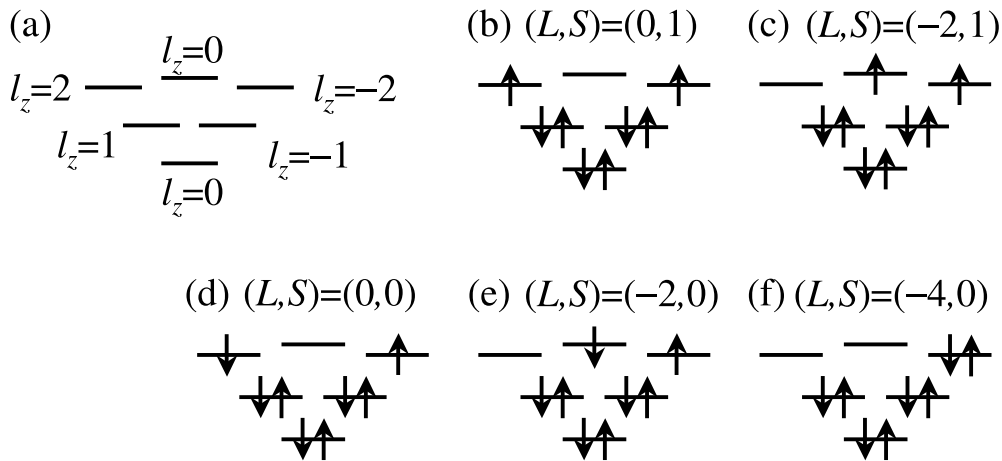


ABBILDUNG 4.3: Effektives Einteilchen-Bild für verschiedene Konfigurationen eines Systems mit acht Elektronen. Einteilchen-Zustände aus derselben Schale, aber mit betragsmäßig wachsendem Drehimpuls liegen energetisch günstiger. Im Falle von Zuständen mit $\pm L$ ist die Konfiguration mit negativem Drehimpuls dargestellt.

Intervall GZ sind oder in dessen unmittelbarer Nähe[¶] liegen. Für diese Zustände wiederholen wir die ED mit erhöhter Genauigkeit unter Verwendung von bis zu 300000 Slater-Determinanten für vier Elektronen und bis zu 400000 für fünf und sechs Elektronen. Die verbesserte Rechnung für $N = 6$, $S = 0$ ist in Abbildung 4.4(b) dargestellt.

Als Resultat erhalten wir GZ-Energien in allen S -Unterräumen für 4 (vgl. Abbildung 4.5(a)), 5 (vgl. Abbildung 4.5(b)) und 6 (vgl. Abbildung 4.5(c)) Elektronen. Aufgrund der hohen Genauigkeit ist es z.B. auch möglich, die korrelationsdominierten Phasenübergänge der Rekonstruktion des $\nu = 2$ -QHDs zum $\nu = 1$ -QHD aufzulösen (Abbildung 4.5).¹⁷³ Dieser Prozeß vollzieht sich in einer Abfolge von Zuständen mit abnehmendem Drehimpuls. Im Gegensatz zum Drehimpuls zeigt jedoch der Spin keine monotone Abhängigkeit.¹⁷³ Eine weitere wichtige Anwendung der ED-Methode im Rahmen dieser Arbeit ist natürlich die Berechnung von Referenzgrößen für die GZ-Energien und -dichten in Kapitel 6 zur Extraktion von XC-Energien.

4.3 Schwerpunktbewegung als gute Quantenzahl

Hawrylak et al.^{57,60} entwickelten ein allgemeines Konzept zur Ausnutzung der CM-Bewegung als gute Quantenzahl, das auf der Trennung von CM- und Relativkoordinaten und gruppentheoretischen Methoden basiert, und wendeten es auf ein Dreielektronen-System an. Es existieren auch Ansätze zur Erweiterung auf Vierelektronen- und N -Elektronen-Systeme.¹² Allerdings ist dieser Zugang in seiner allgemeinen Form für N Teilchen relativ kompliziert zu implementieren. Deshalb soll an dieser Stelle ein alternatives Konzept vorgestellt werden.

[¶]Dadurch ist gewährleistet, daß Verschiebungen der GZ-Energien von Drehimpulsunterräumen aufgrund (noch) fehlender Konvergenz berücksichtigt werden.

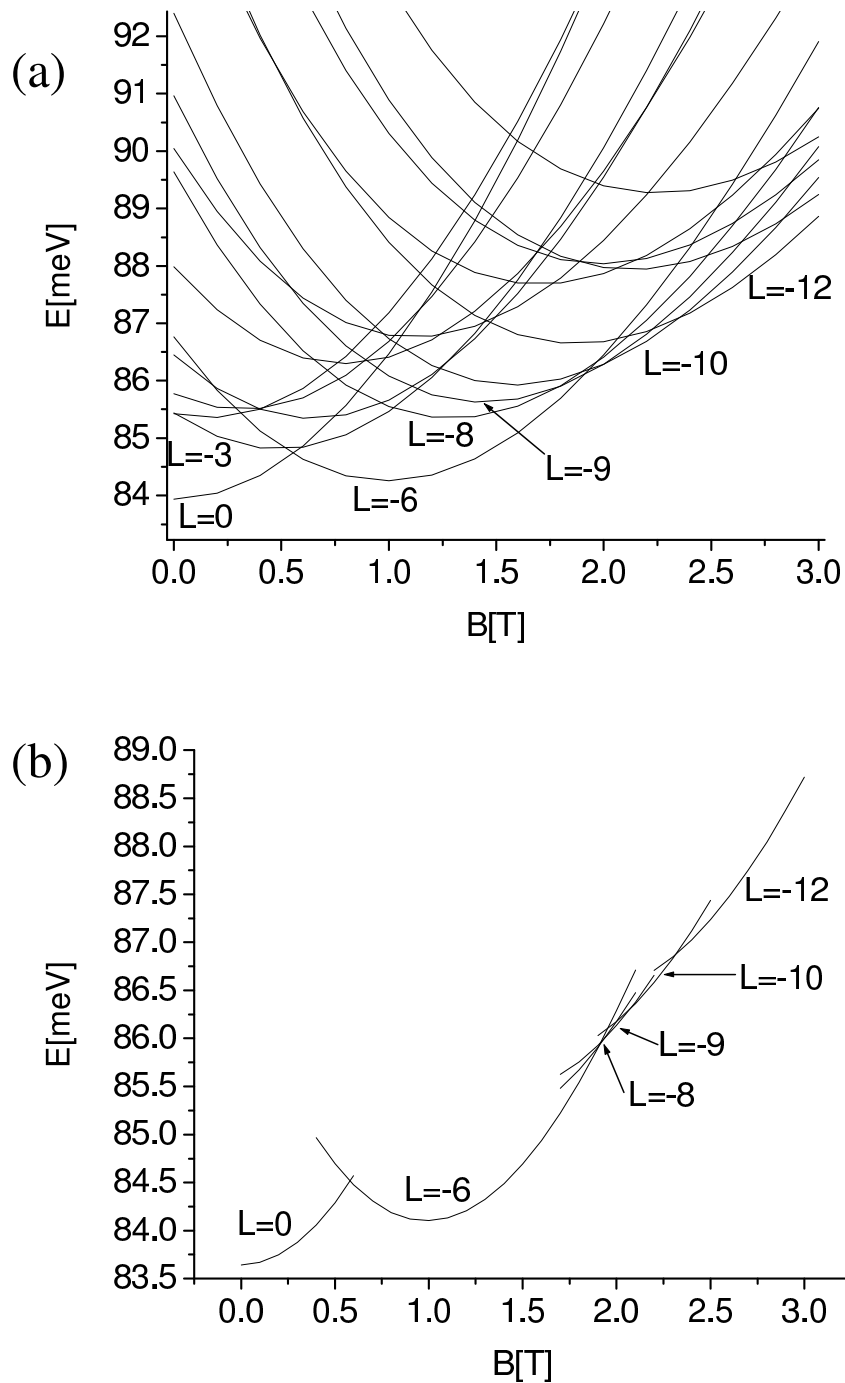


ABBILDUNG 4.4: (a) Testrechnung für ein System mit den Parametern $N = 6$, $\hbar\omega_0 = 3$ meV, $S = 0$ und $L = -17$ bis 0 mit mittlerer Genauigkeit (bis zu 60000 Slater-Determinanten). Es zeigt potentielle GZ-Kandidaten als Funktion des Magnetfelds. (b) Berechnung der GZe desselben Systems, aber mit bis zu 400000 Slater-Determinanten.

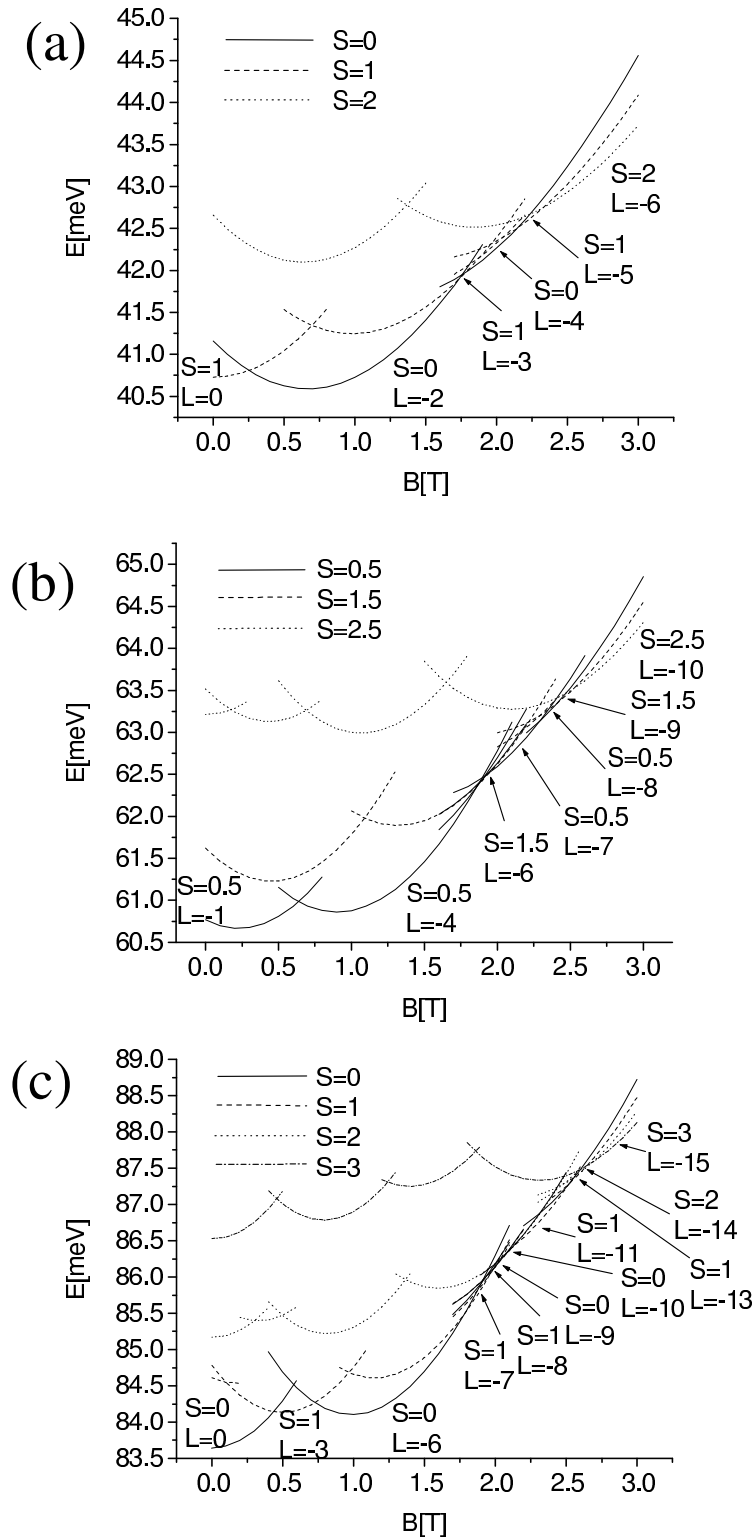


ABBILDUNG 4.5: Rechnung für ein System mit den Parametern $N = 4$ (a), $N = 5$ (b), $N = 6$ (c) und einem Confinement-Potential von $\hbar\omega_0 = 3\text{meV}$. Die GZe aller Elektronenzahlen als Funktion des Magnetfelds sind durch ihren Drehimpuls gekennzeichnet. Die Zahl der Slater-Determinanten beträgt 300000 für $N = 4$ und 400000 für $N = 5, 6$. Die GaAs-Zeeman-Energie ($g = -0.44$) wurde berücksichtigt.

Die Idee ist prinzipiell analog zur Verwendung des Gesamtspins als gute Quantenzahl. Wir lassen uns von der Darstellung des CM-Operators (1.55) in zweiter Quantisierung leiten

$$\hat{C}_- = \frac{1}{N} \sum_{n'_+, n'_-, \sigma'_+, n_+, n_-, \sigma} \sqrt{n'_- + 1} \sqrt{n_-} \hat{c}_{n'_+ (n'_- + 1) \sigma'}^\dagger \hat{c}_{n'_+ n'_- \sigma'} \hat{c}_{n_+ (n_- - 1) \sigma}^\dagger \hat{c}_{n_+ n_- \sigma}. \quad (4.4)$$

Wie zuvor untersuchen wir, welche Slater-Determinanten gekoppelt werden: Der Operator $\hat{C}_-$ erniedrigt (erhöht) die Quantenzahl n_- (n'_-), läßt aber die Quantenzahlen $n_+ \sigma$ ($n'_+ \sigma'$) unverändert. Offensichtlich ist nun das für den Gesamtspin vorgestellte Konzept wie folgt zu modifizieren: Wir fassen alle Slater-Determinanten mit demselben $n_+ \sigma$ -Muster in Blöcken zusammen. Dann koppelt $\hat{C}_-$ nur Zustände innerhalb eines Blocks, der dann diagonalisiert werden kann. Für alle folgenden Berechnungen ist es ausreichend, nur Zustände mit $C_- = 0$ zu berücksichtigen, denn Wellenfunktionen mit Eigenwerten $C_- = 1, 2, 3, \dots$ können systematisch mit Hilfe des Erzeugungsoperators $\hat{A}_+^\dagger$ generiert werden. Dadurch kann eine erhebliche Reduzierung der effektiven Größe der Hamiltonian-Matrix erreicht werden. Leider muß aber hier im Gegensatz zum Fall des Gesamtspins jeder Block separat diagonalisiert werden, da eine explizite Abhängigkeit der $\hat{C}_-$ -Matrixelemente von n_- vorliegt. Außerdem läßt sich die Blockgröße hier nicht bequem abschätzen. Man kann sich nur davon überzeugen, daß sie endlich ist. Dazu wählen wir ein $n_{-\max}$, das der Ungleichung

$$n_{-\max} \geq \sum_j n_{-j} = \sum_j n_{+j} - L = \text{const} \quad (4.5)$$

für die Quantenzahlen der Slater-Determinanten aus einem $n_+ \sigma$ -Block genügt. Damit trägt bei gegebener Teilchenzahl N und gegebenem Drehimpuls L nur eine endliche Zahl von Einteilchen-Zuständen zur Generierung der Vielteilchen-Zustände bei, deren Zahl folglich auch endlich ist.^{||} Rechnungen zeigen allerdings, daß die Blockgröße mit der Teilchenzahl schnell auf unhandliche Werte anwächst, was dem Verfahren enge Grenzen setzt.

4.4 Schwerpunktbewegung und Gesamtspin als gute Quantenzahlen

Unser nächstes Ziel ist die Kombination von CM-Bewegung und Gesamtspin als gute Quantenzahlen. Ausgehend von den Kopplungsschemata für $\hat{S}^2$ ($n_+ n_-$ -Muster) und für $\hat{C}_-$ ($n_+ \sigma$ -Muster) bilden wir aus $n_+ \sigma$ -Blöcken Superblöcke, die durch dasselbe $n_+ \sigma$ -Muster charakterisiert sind. Da diese Blöcke eine Übermenge sowohl der $n_+ n_-$ - als auch der $n_+ \sigma$ -Muster darstellen, koppeln $\hat{S}^2$ wie auch $\hat{C}_-$ nur Zustände innerhalb eines Superblocks.

Durch diese Struktur bedingt, liegt dann folgende Vorgehensweise nahe: Zunächst werden die Zustände mit $C_- = 0$ der einzelnen $n_+ \sigma$ -Blöcke eines Superblocks berechnet. Die Eigenzustände mit $C_- = 0$ werden anschließend bezüglich des Gesamtspins

^{||}Unvollständige Blöcke hätten nicht-ganzzahlige Eigenwerte C_- zur Folge.

Super-block	n_+ -Muster	Größe	Block	$n_+\sigma$ -Muster	Größe	$C_- = 0$	Spinauflöst
1	(0, 0, 0, 0)	728	a	(0 ↓, 0 ↓, 0 ↑, 0 ↑)	728	78	$S = 0$: 26 $S = 1$: 42 $S = 2$: 10
2	(0, 0, 0, 1)	3458	a	(0 ↓, 0 ↓, 0 ↑, 1 ↑)	1729	182	$S = 0$: 126
			b	(0 ↓, 1 ↓, 0 ↑, 0 ↑)	1729	182	$S = 1$: 182 $S = 3$: 56
3	(0, 0, 1, 1)	5880	a	(0 ↓, 0 ↓, 1 ↑, 1 ↑)	910	91	$S = 0$: 196
			b	(0 ↓, 1 ↓, 0 ↑, 1 ↑)	5880	406	$S = 1$: 301
			c	(1 ↓, 1 ↓, 0 ↑, 0 ↑)	910	91	$S = 2$: 91
4	(0, 1, 1, 1)	4270	a	(0 ↓, 1 ↓, 1 ↑, 1 ↑)	2135	210	$S = 0$: 145
			b	(1 ↓, 1 ↓, 0 ↑, 1 ↑)	2135	210	$S = 1$: 210 $S = 2$: 65
5	(1, 1, 1, 1)	1120	a	(1 ↓, 1 ↓, 1 ↑, 1 ↑)	1120	105	$S = 0$: 35 $S = 1$: 56 $S = 2$: 14
Σ		15456			15456	1555	$S = 0$: 528 $S = 1$: 791 $S = 2$: 236

TABELLE VI: Reduzierung des Hilbertraums für den Unterraum $(S_z, L) = (0, -25)$ eines Vierelektronen-Systems in zwei LL unter Ausnutzung des CM-Operators $\hat{C}_-$ und des Gesamtspins als gute Quantenzahlen. Die ersten drei Spalten enthalten alle Informationen über die Superblöcke. Diese zerfallen in $n_+\sigma$ -Blöcke (vierte und fünfte Spalte), deren Zahl an Zuständen mit $C_- = 0$ (vorletzte Spalte) nur einen Bruchteil ihrer Größe (sechste Spalte) ausmacht. In der letzten Spalte ist die Zahl der $C_- = 0$ -Zustände eines Superblocks mit $S = 0, 1, 2$ angegeben.

diagonalisiert. Das Ergebnis ist eine Vielteilchen-Basis aus Eigenfunktionen zu den Operatoren $\hat{L}$, $\hat{S}_z$, $\hat{S}^2$ und $\hat{C}_-$. Falls wir noch voraussetzen, daß wir mit dem Unterraum mit $S_z = \pm(N \bmod 2)/2$ starten, erhalten wir die Eigenzustände des Gesamtspinoperators zu allen Eigenwerten in einem Schritt (siehe Tabelle VI).

4.5 Exakte Diagonalisierung in hohen Magnetfeldern

In Abbildung 4.6 ist die Struktur des Programms für ED in hohen Magnetfeldern dargestellt. A priori ist die Einschränkung auf hohe Magnetfelder für die Ausnutzung von CM-Bewegung und Gesamtspin als gute Quantenzahlen nicht offensichtlich. Diese Restriktion ist eine Folge der Struktur des CM-Operators $\hat{C}_-$ und dessen Implementierung. Wie oben diskutiert wurde, ist es möglich, für ein $n_+\sigma$ -Muster die maximale Größe der relevanten n_- -Quantenzahlen abzuschätzen. Dies läßt sich verallgemeinern, falls wir annehmen, daß nur die $n_{+\max}$ untersten Landau-Levels (LL) besetzt sind, wie es für hohe Magnetfelder der Fall ist. In diesem Regime ist der energetische Abstand zwischen einzelnen Landau-Niveaus so groß, daß die Bedeutung höherer Ni-

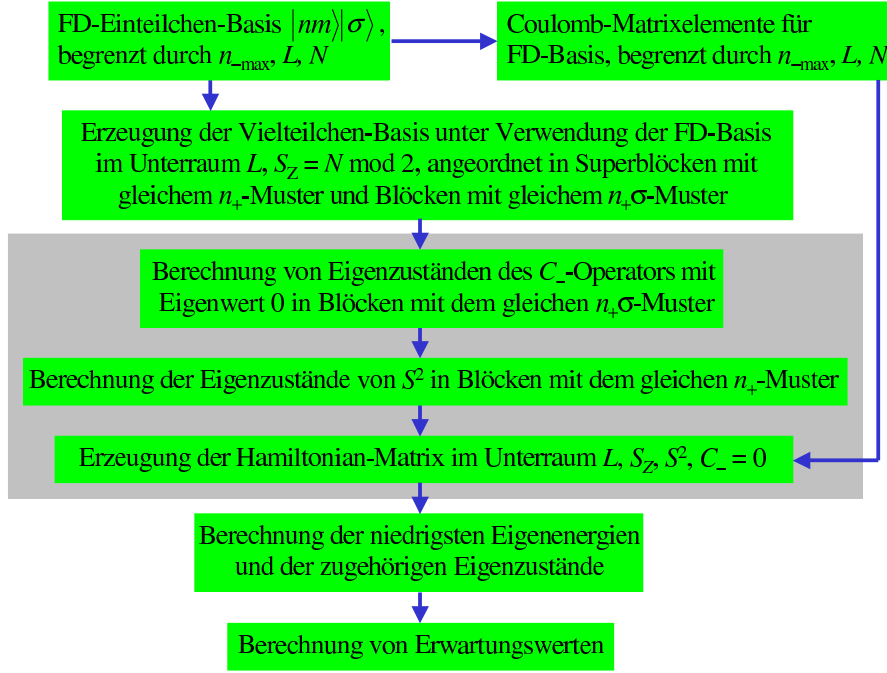


ABBILDUNG 4.6: Konzept für die ED mit CM-Bewegung und Gesamtspin als gute Quantenzahlen.

veaus rasch abnimmt. Gleichzeitig nehmen für positives Magnetfeld die Drehimpulse L immer weiter ab (betragsmäßig werden sie allerdings größer). Somit wählt man ein $n_{\max}(n_{+\max}, N, L)$ mit der Eigenschaft

$$n_{\max}(n_{+\max}, N, L) \geq Nn_{+\max} - L \geq \sum_j n_{+j} - L = \sum_j n_{-j}, \quad (4.6)$$

d.h. wir können alle relevanten Einteilchen-Zustände als Funktion der Parameter $n_{+\max}$, N und L bestimmen und dadurch mit Hilfe von $n_{+\max}$ die Qualität der Näherung kontrollieren.

Aus den durch $n_{+\max}$ und $n_{-\max}$ begrenzten Einteilchen-Zuständen werden für das N -Elektronen-System mit Drehimpuls L und Spin S_z alle Slater-Determinanten generiert und in der oben beschriebenen Block- und Superblock-Struktur organisiert. Im ersten Schritt diagonalisieren wir die $n_+\sigma$ -Blöcke. Alle Zustände eines Superblocks mit $C_- = 0$ werden anschließend in Eigenzustände von $\hat{S}^2$ rotiert. Somit liegt eine Vielteilchen-Basis vor, deren Zustände Eigenfunktionen von $\hat{L}$, $\hat{S}_z$, $\hat{S}^2$ und $\hat{C}_-$ sind. Aus diesen Wellenfunktionen wird unter Verwendung der Coulomb-Matrixelemente die Hamiltonian-Matrix berechnet. Die entstehenden Eigenwertprobleme sind dabei klein genug, um sie mit Standarddiagonalisierungsverfahren behandeln zu können.

Die Vorzüge dieser Methode liegen vor allem darin, daß sie einen systematischen Zugang zur Struktur des Anregungsspektrums eröffnet, da nur Eigenzustände mit $C_- = 0$ berücksichtigt werden.

Leider ist diese auf den ersten Blick ansprechende Methode mit einigen gravierenden Nachteilen behaftet (vgl. Abschnitt 4.6). Für die eigentliche Zielsetzung der vorliegenden Arbeit schied sie deshalb aus. Dennoch werden im folgenden Abschnitt einige Ergebnisse für kleine Teilchenzahlen vorgestellt, um das Prinzip zu demonstrieren.

4.5.1 Ergebnisse

In diesem Abschnitt zeigen wir die Resultate für vier Elektronen im Magnetfeldintervall von 0 bis 8T. Der Rechnung liegen wiederum ein Confinement-Potential von 3meV und GaAs-Parameter ($\varepsilon = 12.4$, $m^* = 0.067m_e$) zugrunde. An dieser Stelle werden wir uns nur auf Ergebnisse für zwei LL beschränken. Ein ausführlicher Vergleich zwischen ein und zwei LL mit und ohne Zeeman-Energie findet sich in Referenz¹⁷³.

Abbildung 4.7(a) zeigt die GZe und die zwei niedrigsten angeregten Zustände mit $C_- = 0$ eines jeden Unterraums $S = 0, 1, 2$ und $L = -25, \dots, 0$ ($g = 0$). Die Beschreibung des Regimes bis 3T ist aufgrund der Einschränkung auf zwei LL nicht sehr verlässlich. So werden z.B. die Schaleneffekte bei $B = 0$ und insbesondere die Hundsche Regel nicht reproduziert. Aber zumindest die GZ-Phasen zwischen dem $\nu = 2$ - und dem $\nu = 1$ -QHD werden qualitativ richtig wiedergegeben (vgl. Abbildung 4.5(a)), wobei allerdings Abstriche in der Genauigkeit der Übergangsmagnetfelder zu machen sind.

Die Qualität der Zwei-LL-Näherung ist jedoch erst im Regime hoher Magnetfelder, d.h. für das $\nu = 1$ -QHD und jenseits davon befriedigend. Dieses Regime wird in einer Vielzahl von Arbeiten sogar nur in der LLL-Approximation behandelt.^{117,118} Ab $B = 4$ T beginnt die Rekonstruktion des $\nu = 1$ -Droplets. Ähnlich der Rekonstruktion des $\nu = 2$ -Droplets äußert sich dieser korrelationsdominierte Effekt in der Reihe von GZ-Übergängen mit abnehmendem Drehimpuls. Insbesondere spielen auch weiterhin unpolarisierte ($S = 0$) und teilweise polarisierte Zustände ($S = 1$) eine wichtige Rolle. Dies ist selbst bei Berücksichtigung der GaAs-Zeeman-Energie noch der Fall.¹⁷³

Eine interessante Eigenschaft des Spektrums in Abbildung 4.7(a) ist die Separation des Energiebands der GZe von höher angeregten Zuständen mit $C_- = 0$ ($\Delta E \approx 0.6$ meV, durch Doppelpfeil gekennzeichnet). Da auch die Anregung der CM-Bewegung von der gleichen Größenordnung ist ($\hbar\omega_- = 0.62$ meV bei 8T und größer für kleinere Magnetfelder), können wir folgern, daß die niedrigsten Anregungen im Magnetfeld von 4T bis 8T nicht kollektiver Natur sind. In Abbildung 4.7(b) ist das Anregungsspektrum bei $B = 6$ T dargestellt. Der GZ ist durch $S = 1$, $L = -12$ gekennzeichnet. Die darauffolgenden 11 Zustände sind die GZ von anderen Unterräumen ($(S, L) = (0, -10), (1, -11), (0, -12), (2, -10), (1, -13), (1, -9), (0, -14), (2, -14), (0, -8), (1, -15), (1, -8)$). Durch eine kleine Energielücke davon getrennt folgt der erste angeregte Zustand aus dem Unterraum $(S, L) = (1, -11)$, der noch unterhalb der CM-Anregungsenergie des GZs $(S, L) = (1, -12)$ liegt.

4.6 Grenzen der Exakten Diagonalisierung

Die ED ist eine mächtige Methode zur Untersuchung wechselwirkender Elektronen in Quantendots. Eine sinnvolle Genauigkeit (d.h. vergleichbar zu QMC-Rechnungen) läßt sich allerdings nur bei geringen Teilchenzahlen $N \leq 8$ erreichen, und selbst dabei ist die Ausnutzung von Symmetrien essentiell. Ziel ist immer, ein großes Problem in kleinere Teilprobleme zu zerlegen, die separat gelöst werden können. Dieses Konzept geht für die ED unter Ausnutzung des Gesamtspins als gute Quantenzahl auf.

Im Fall der ED in starken Magnetfeldern scheitert jedoch diese Idee. Die einzelnen $n_+ \sigma$ -Blöcke, die diagonalisiert werden müssen, wachsen mit N zu nicht mehr handhabbaren Größen heran. Die Problematik soll anhand eines (fiktiven) Beispiels illu-

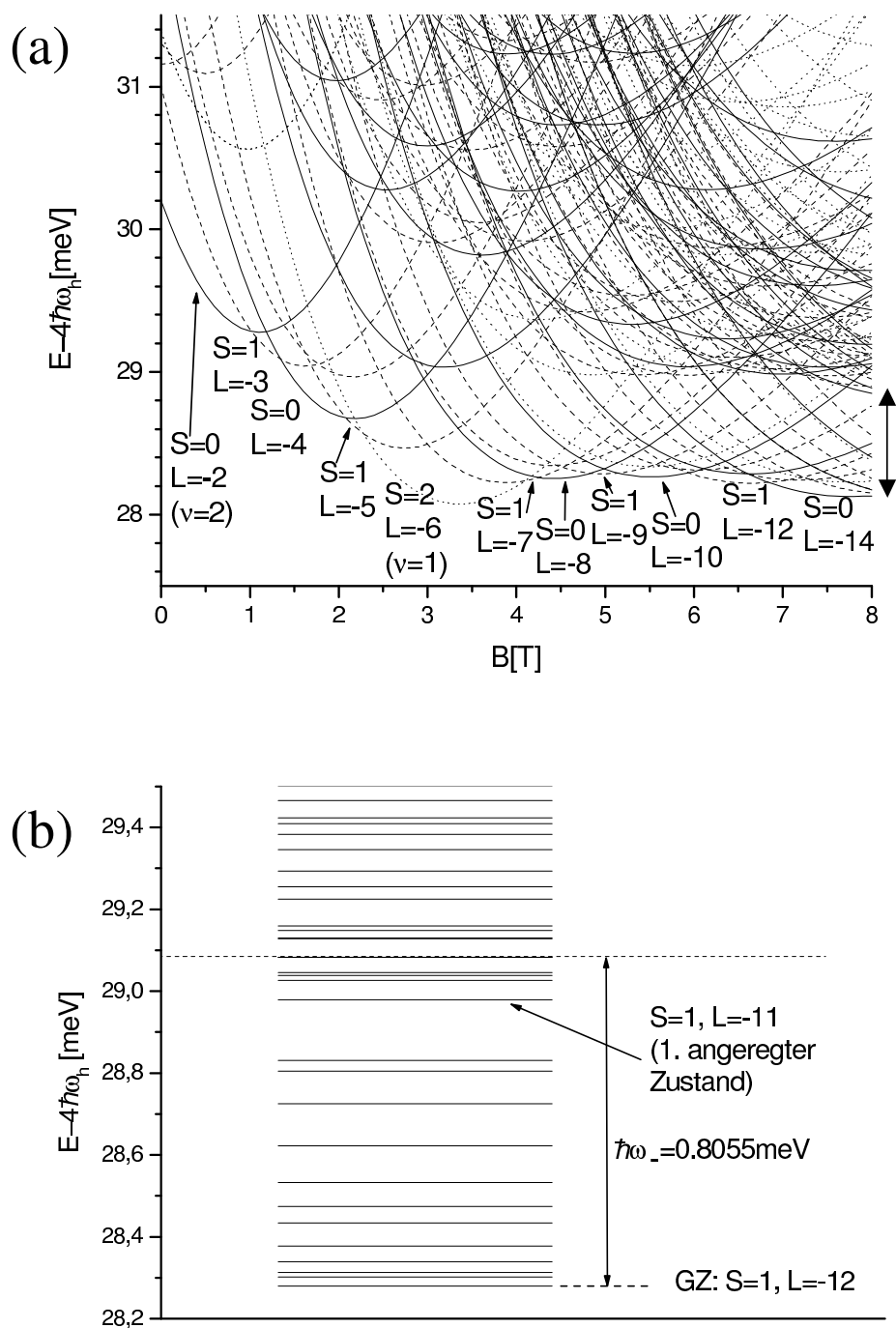


ABBILDUNG 4.7: (a) Spektrum eines Systems mit den Parametern $N = 4$, $\hbar\omega_0 = 3\text{ meV}$ und $g = 0$ in den zwei untersten LL. Die Abbildung umfaßt den GZ und die zwei niedrigsten angeregten Zustände mit $C_- = 0$ für die Spins $S = 0$ (durchgezogene Linien), $S = 1$ (gestrichelt) und $S = 2$ (gepunktet) und die Drehimpulse $L = -25$ bis 0. Der Doppelpfeil kennzeichnet die Separation des Bands von GZen von den angeregten Zuständen (siehe Text für Details). (b) Spektrum des Systems bei einem Magnetfeld von 6T. Die gestrichelte Linie markiert die CM-Anregungsenergie $\hbar\omega_- = 0.8055\text{ meV}$ aus dem GZ.

striert werden: Nehmen wir an, daß insgesamt 300000 Slater-Determinanten für ein N -Teilchen-System mit Drehimpuls L vorliegen. Dann existieren einige große $n_+\sigma$ -Blöcke mit einer Zahl von Zuständen zwischen 10000 und 50000, d.h. die Matrix für den Operator $\hat{C}_-$ ist im schlechtesten Fall eine 50000×50000 -Matrix. Da sie dünn besetzt ist, kann sie ohne Probleme gespeichert werden. Wir stehen nun vor der Aufgabe, alle Eigenzustände mit $C_- = 0$ zu ermitteln. Aufgrund der Matrixgröße und des hohen Entartungsgrades (ca. 20000) scheiden Standarddiagonalisierungsverfahren oder iterative Methoden aus. Der einzig gangbare Weg ist die Singular-Value-Decomposition (SVD), die hier angewendet werden kann, weil die Eigenwerte von $\hat{C}_-$ bekannt sind. Allerdings beruht die SVD auf einer Transformation der ursprünglich dünn besetzten Matrix auf eine nicht dünn besetzte Dreiecksmatrix, wodurch das Verfahren an Speichermangel scheitert.

In solch einer Situation ist es vorteilhafter, auf die Ausnutzung der CM-Symmetrie zu verzichten und nur unter Zuhilfenahme des Gesamtspins eine effektive Hamiltonian-Matrix der maximalen Größe 150000 zu generieren, die dünn besetzt ist. Ein iteratives Schema kann dann die energetisch niedrigsten Eigenzustände berechnen.

Aus diesem Grund wurden in der vorliegenden Arbeit alle ED-Resultate mit Ausnahme derer in Paragraph 4.5.1 ohne Ausnutzung der CM-Symmetrie gewonnen.

KAPITEL 5

Methoden zur Extraktion von Austausch-Korrelations-Energiedichten

Vor etwa 20 Jahren wurden die ersten Arbeiten zur Invertierung der KS-Gleichungen, d.h. der Berechnung von XC-Potentialen bei gegebener GZ-Dichte, publiziert. Allerdings lag der Schwerpunkt auf 3D-Systemen wie Atomen und Molekülen, deren GZ-Dichten aus Experimenten, HF- oder QMC-Rechnungen bekannt waren. Im folgenden wollen wir uns einen Überblick über die verschiedenen Methoden verschaffen.

In einer Pionierarbeit von Almbladh & Pedroza (1984²) wird ein parametrisiertes XC-Potential an die Elektronendichten von leichten Atomen angepaßt. Dagegen verfolgen Aryasetiawan & Stott (1988³) ein Konzept, das die Umformulierung des Problems auf $(N - 1)$ gekoppelte nicht-lineare Differentialgleichungen vorsieht. Mit Hilfe von Pauli-Potential und -Energie sowie $(N - 1)$ Euler-Gleichungen leiten Holas & March (1991⁶⁵) eine Lösung ab, die letztendlich auf eine Differentialgleichung für die Dichteamplitude $\sqrt{n(r)}$ führt. Görling (1992⁴⁹) beschreibt einen Ansatz, dem die lineare Antwort von Potentialen auf kleine Dichteänderungen zugrunde liegt. Ein iteratives Verfahren zur Konstruktion von KS-Orbitalen und XC-Potentialen bei einer gegebenen Elektronendichte präsentieren Wang & Parr (1993¹⁶⁶). Dabei wird im wesentlichen die invertierte KS-Schrödinger-Gleichung zur Generierung eines verbesserten effektiven Potentials im nächsten Iterationsschritt genutzt. In einer weiteren Arbeit, die sich hauptsächlich auf die Funktionale der kinetischen Energie konzentriert, schlagen Zhao, Morrison & Parr (1994¹⁸³) eine andere Methode zur Gewinnung von $V_{XC}(r)$ vor, die auf Lagrange-Multiplikatoren basiert. In Anknüpfung an Referenz¹⁶⁶ stellen Leeuwen & Baerends (1994⁹⁴) eine modifizierte Form für die invertierte Schrödinger-Gleichung vor. Dieser Ansatz wird in der vorliegenden Arbeit aufgegriffen und in Paragraph 5.2.1 detailliert dargestellt. Die von Zhao, Morrison & Parr vorgeschlagene Methode wird einer Reihe von weiteren Arbeiten zugrunde gelegt: Tozer et al. (1996¹⁵⁹) verwenden sie, um mit Hilfe der aus den Dichten berechneten XC-Potentiale neuronale Netze zu trainieren, die selbst wiederum verbesserte XC-Potentiale liefern sollen. In einer weiteren Arbeit versuchen Tozer et al. (1997¹⁵⁸), aus XC-Potentialen die Fitparameter für ein XC-Funktional zu bestimmen. Dagegen erweitern Lee & Handy (1999⁹³)

die Methode von Zhao, Morrison & Parr auf Austausch-Vektorpotentiale; da nur HF-GZ-(Strom)-Dichten vorlagen, konnten keine XC-Vektorpotentiale berechnet werden.

Allerdings äußern drei vor kurzem veröffentlichte Arbeiten^{18,19,35} erhebliche Zweifel an der mathematischen Fundierung der Konzepte, sofern sie SDFT oder CSDFT betreffen. Wir wenden uns den Problemen im Anschluß an diesen Abschnitt zu. Wie bei allen oben erwähnten Arbeiten ist auch bei uns die Hauptmotivation, Unsicherheiten in den Parametrisierungen (vgl. Abschnitt 2.3) zu beseitigen und ein vertieftes Verständnis der exakten XC-Potentiale zu erreichen. Dabei werden wir insbesondere auf die spezielle Problematik der (C)SDFT eingehen.

5.1 Voraussetzungen

In Paragraph 2.2.1 wiesen wir schon darauf hin, daß in der (C)SDFT die Abbildung $C: \mathcal{V} \rightarrow \psi, (\hat{V}_\sigma, \hat{A}) \mapsto |\Psi\rangle$ nicht injektiv ist, d.h. einer vorliegenden GZ-Wellenfunktion kann nicht eindeutig ein Potentialtupel $(\hat{V}_\sigma, \hat{A})$ zugeordnet werden. Eine wichtige Konsequenz dieser Nicht-Eindeutigkeit der Potentiale ist das Auftreten von Unstetigkeiten in Zusammenhang mit den Funktionalableitungen des HK-Funktionalen bzw. der XC-Energie bezüglich der GZ-Dichten.¹⁸ Weiter folgern Capelle & Vignale (2001¹⁸), daß dieses Problem auch die Bestimmung von exakten XC-Potentialen aus (numerisch) exakten Dichten betrifft. Für die vorliegende Arbeit ist aber der zuletzt genannte Schritt essentiell. Deshalb werden wir im folgenden zeigen, wie im Fall des QD-Hamiltonians die mit der Nicht-Eindeutigkeit verknüpften Schwierigkeiten vermieden werden können.

Die wichtigsten Ursachen des Problems sind Symmetrien und ein diskretes Spektrum, wie sie auch für isotrope parabolische QDs auftreten. In diesem Zusammenhang sprechen Capelle & Vignale (2001¹⁸) von systematischer Nicht-Eindeutigkeit, da diese Konstellation die Konstruktion von (überabzählbar) unendlich vielen Potentialtupeln zu einer gegebenen GZ-Wellenfunktion erlaubt.

Wir wollen diesen Sachverhalt anhand des QD-Hamiltonians illustrieren, der der Relation (1.62)

$$\hat{H}(\omega_0, \omega_c, N) = \hat{H}(\sqrt{\omega_0^2 + \omega_c^2/4}, 0, N) + \frac{\omega_c}{2} \hat{L} \quad (5.1)$$

bzw. ihrer offensichtlichen Verallgemeinerung

$$\hat{H}(\omega_0, \omega_c, N) - \frac{\omega_c}{2} \hat{L} = \hat{H}(\omega'_0, \omega'_c, N) - \frac{\omega'_c}{2} \hat{L} \quad \text{für} \quad \omega_0^2 + \omega_c^2/4 = \omega'^2_0 + \omega'^2_c/4 \quad (5.2)$$

genügt. Angenommen, der energetisch niedrigste Zustand $|\Psi(\omega_0, \omega_c)\rangle_L$ des Drehimpulsunterraums L sei nicht-entarteter GZ eines QDs mit N Elektronen und Confinement-Potential ω_0 im Magnetfeld $\omega_c \propto B$. Da die Eigenenergien von Wellenfunktionen eine stetige Funktion der Parameter ω_0 und ω_c sind, bleibt aufgrund des diskreten Spektrums $|\Psi(\omega_0, \omega_c)\rangle_L$ GZ in einer offenen Umgebung $[\omega_1, \omega_2] \times [\omega_{c1}, \omega_{c2}]$ von (ω_0, ω_c) , d.h. dort treten keine Niveaukreuzungen auf. Dann ist aber gemäß (5.2) die Wellenfunktion $|\Psi(\omega_0, \omega_c)\rangle_L$ identisch mit den Wellenfunktionen $|\Psi(\omega'_0, \omega'_c)\rangle_L$, für deren Parametertupel $(\omega'_0, \omega'_c) \in [\omega_1, \omega_2] \times [\omega_{c1}, \omega_{c2}]$ die Relation

$\omega_0^2 + \omega_c^2/4 = \omega_0'^2 + \omega_c'^2/4 = \text{const.}$ erfüllt ist. Offensichtlich gibt es überabzählbar unendlich viele Tupel (ω_0', ω_c') , die diese Eigenschaft besitzen und damit entsprechend viele identische GZ-Wellenfunktionen.

Das folgende Beispiel soll die obige Überlegung noch einmal veranschaulichen. Wie ED-Rechnungen (vgl. Abbildung 4.5(b)) zeigen, ist der unterste Zustand des durch die Quantenzahlen $L = -1$, $S = 1/2$, $S_z = -1/2$ definierten Unterraums der GZ eines QDs mit fünf Elektronen, einer Confinementenergie von 3meV und bei Magnetfeldern $0 \leq B < 0.5\text{T}$. Dann haben gemäß Gleichung (5.2) z.B. die beiden Systeme mit Confinementenergie 3.00776meV und $B = 0$ bzw. mit Confinementenergie 3meV und $B = 0.25\text{T}$ dieselbe GZ-Wellenfunktion.

Allerdings erlaubt die Eigenschaft (5.2) des Hamilton-Operators auch einen Ausweg aus dem Dilemma: Wie schon in Abschnitt 1.2.2 diskutiert, kann mit Hilfe von (5.2) ein QD im Magnetfeld auf ein System mit $B = 0$ abgebildet werden.* Insbesondere sind die XC-Effekte im Magnetfeld dieselben wie bei $B = 0$. Dies wird auch von einer entsprechenden Skalierungseigenschaft des KS-Hamiltonians (2.69) von QDs unterstrichen†

$$\begin{aligned}
 \hat{H}_{\text{KS}}(\omega_0, \omega_c, N) &= \sum_{j=1}^N \left\{ -\frac{\hbar^2}{2m^*} \left[\frac{1}{r_j} \frac{\partial}{\partial r_j} \left(r_j \frac{\partial}{\partial r_j} \right) + \frac{1}{r_j^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi_j^2} \right] + \frac{1}{2} m^* (\omega_0^2 + \omega_c^2/4) r_j^2 \right. \\
 &\quad \left. + \frac{\partial}{\partial \varphi_j} \left(\frac{\hbar \omega_c}{2i} + \frac{\hbar e}{im^*} \frac{A_{\text{XC},\varphi}(r_j)}{r_j} \right) + V_{\text{H}}(r_j) + \sum_{\sigma_j} V_{\text{XC}\sigma_j}(r_j) |\sigma_j\rangle \langle \sigma_j| \right\} \\
 &= \sum_{j=1}^N \left\{ -\frac{\hbar^2}{2m^*} \left[\frac{1}{r_j} \frac{\partial}{\partial r_j} \left(r_j \frac{\partial}{\partial r_j} \right) + \frac{1}{r_j^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi_j^2} \right] + \frac{1}{2} m^* (\omega_0^2 + \omega_c^2/4) r_j^2 \right. \\
 &\quad \left. + \frac{\partial}{\partial \varphi_j} \left(\frac{\hbar e}{im^*} \frac{A_{\text{XC},\varphi}(r_j)}{r_j} \right) + V_{\text{H}}(r_j) + \sum_{\sigma_j} V_{\text{XC}\sigma_j}(r_j) |\sigma_j\rangle \langle \sigma_j| \right\} \\
 &\quad + \sum_{j=1}^N \frac{\hbar \omega_c}{2i} \frac{\partial}{\partial \varphi_j} \\
 &= \hat{H}_{\text{KS}}(\sqrt{\omega_0^2 + \omega_c^2/4}, 0, N) + \frac{\omega_c}{2} \hat{L}.
 \end{aligned} \tag{5.3}$$

Somit können wir uns formal immer auf den magnetfeldfreien Fall zurückziehen. Dann ist allerdings im wechselwirkenden System die Eindeutigkeit des Potentials durch das ursprüngliche HK-Theorem garantiert, im Falle des KS-Hamiltonians für QDs ist die Eindeutigkeit der XC-Potentiale direkt einsehbar (vgl. Anhang D). Folglich sind die Funktionalableitungen des Energiefunktionals bezüglich der GZ-Dichten nicht unstetig.

An dieser Stelle weisen wir noch einmal darauf hin, daß die GZ-Spindichten $n_\sigma(r)$ und skalaren Potentiale nur eine radiale Abhängigkeit aufweisen und die Stromdichte

*Wir weisen darauf hin, daß als GZ im Magnetfeld $B > 0$ der energetisch niedrigste Zustand eines Unterraums mit Drehimpuls $L \ll -1$ vorliegt. Dies bedeutet wiederum, daß derselbe Zustand nicht GZ sondern angeregter Zustand bei $B = 0$ ist. Allerdings ändert sich bei der Abbildung auf $B = 0$ nicht die Reihenfolge von Zuständen innerhalb eines Drehimpulsunterraums.

†Hier verwenden wir die Vielteilchen-Darstellung des effektiven Einteilchen-Hamiltonians, verzichten aber zugunsten einer einfacheren Notation auf die Zeeman-Energie.

und Vektorpotentiale nur aus einer azimuthalen Komponente bestehen, die ebenfalls ausschließlich vom Radius abhängt. Folglich ist die Vortizität parallel zur z -Achse und eine Funktion von r .

Bei der bisherigen Diskussion haben wir die Rolle der Zeeman-Energie vernachlässigt, obwohl sie prinzipiell auch der Ursprung von Nicht-Eindeutigkeit sein kann.¹⁸ So bleibt z.B. im Falle eines nicht-entarteten GZs eines QDs die GZ-Wellenfunktion unverändert, wenn wir die Spinabhängigkeit des externen Potentials, d.h. den g -Faktor, entsprechend moderat ändern.[‡] Hintergrund ist wiederum eine Erhaltungsgröße, nämlich $\hat{S}_z$. Allerdings ist dieser Effekt weniger interessant, da die entsprechenden Zeeman-Energien für gemeinsame Eigenzustände von Hamiltonian und $\hat{S}_z$ sowohl im exakten System wie im KS-System nachträglich zu ergänzen sind. Ferner hat der Zeeman-Term im Gegensatz zur Änderung des B -Feldes keine Auswirkungen auf die orbitale Struktur von Wellenfunktionen.

5.2 Methode

In diesem Abschnitt setzen wir die GZ-Dichten ($n_\sigma(r)$, $j_{p,\varphi}(r)$) und -Energie E_{GZ} des QD-Hamiltonians (1.27) bzw. (1.34) als gegeben voraus. In allen numerischen Rechnungen in Kapitel 6 werden GZ-Dichten und -Energien aus ED (vgl. Kapitel 4 bzw. Referenz¹⁷⁴) verwendet. Obwohl diese aufgrund des endlichen Hilbertraums in der ED nicht im mathematischen Sinne exakt sind, werden sie im folgenden dennoch als exakt bezeichnet, da es sich um konvergente Resultate handelt.

Die Extraktion der XC-Energiedichten erfolgt in zwei Schritten. Zunächst werden mit Hilfe eines Iterationsschemas die exakten XC-Potentiale[§] selbstkonsistent bestimmt, so daß sie die exakten Dichten im KS-Schema reproduzieren. Anschließend extrahieren wir unter Annahme der lokalen Dichtenäherung die XC-Energiedichten aus den XC-Potentialen.

5.2.1 Exakte Austausch-Korrelations-Potentiale

Das erste Ziel ist die Berechnung der exakten XC-Potentiale des Systems

$$V_{XC,\sigma}(r) := V_{XC,\sigma}([n_\sigma, j_{p,\varphi}], r) + c_\sigma \quad (5.4)$$

$$A_{XC,\varphi}(r) := A_{XC,\varphi}([n_\sigma, j_{p,\varphi}], r) \quad (5.5)$$

aus den gegebenen Dichten, d.h. wir suchen die selbstkonsistente Lösung der KS-Schrödinger-Gleichung (2.69) unter Beachtung der Randbedingungen

$$(n_\sigma(r), j_{p,\varphi}(r)) = (n_{KS,\sigma}(r), j_{p,KS,\varphi}(r)). \quad (5.6)$$

Das Iterationsschema basiert auf folgender Überlegung, die sich an der Arbeit von Wang & Parr (1993¹⁶⁶) orientiert. Sie stellt keinen Beweis im mathematischen Sinne als vielmehr ein Plausibilitätsargument dar.

[‡]Mit Hilfe des g -Faktors kann die Spinabhängigkeit des externen Potentials unabhängig vom Magnetfeld manipuliert werden. Eine Änderung von B hätte dagegen auch Auswirkungen auf das Vektorpotential.

[§]Die XC-Potentiale sind nur insofern exakt, wie es die Genauigkeit der GZ-Dichten aus ED erlaubt.

Dazu spalten wir vom KS-Hamiltonian das skalare XC-Potential ab und bezeichnen den Rest als $\hat{H}_{0,\sigma}$

$$\hat{H}_{S,\sigma} = \hat{H}_{0,\sigma} + \hat{V}_{XC,\sigma}. \quad (5.7)$$

Mit den Eigenfunktionen $\phi_{j,\sigma}(\mathbf{r})$ und Eigenwerten $\varepsilon_{j,\sigma}$ des KS-Hamiltonians erhalten wir den Zusammenhang zwischen exakten Spindichten und exakten XC-Potentialen

$$V_{XC,\sigma}(r) = \frac{1}{n_\sigma(r)} \sum_j \phi_{j,\sigma}^*(\mathbf{r}) (\varepsilon_{j,\sigma} - H_{0,\sigma}) \phi_{j,\sigma}(\mathbf{r}). \quad (5.8)$$

Seien $\phi_{j,\sigma}^{(k)}(\mathbf{r})$ die Eigenfunktionen, $\varepsilon_{j,\sigma}^{(k)}$ die Eigenwerte und $n_{KS,\sigma}^{(k)}(r)$ die Dichten im Iterationsschritt k , d.h. sie sind die Lösungen der KS-Schrödinger-Gleichung mit dem KS-Hamiltonian[¶] $\hat{H}_{S,\sigma}^{(k-1)} = \hat{H}_{0,\sigma} + \hat{V}_{XC,\sigma}^{(k-1)}$. Dann kann mit Hilfe von Gleichung (5.8) das XC-Potential für den nächsten Iterationsschritt konstruiert werden

$$V_{XC,\sigma}^{(k)}(r) = \frac{1}{n_\sigma(r)} \sum_j \phi_{j,\sigma}^{(k)*}(\mathbf{r}) (\varepsilon_{j,\sigma}^{(k)} - H_{0,\sigma}) \phi_{j,\sigma}^{(k)}(\mathbf{r}). \quad (5.9)$$

Unter Ausnutzung der Tatsache, daß die Wellenfunktionen $\phi_{j,\sigma}^{(k)}(\mathbf{r})$ die Lösungen für $\hat{H}_{S,\sigma}^{(k-1)}$ sind, lautet das Iterationsschema für das skalare Potential (für den Fall $B = 0$ vgl. Referenz⁹⁴)

$$V_{XC,\sigma}^{(k)}(r) = V_{XC,\sigma}^{(k-1)}(r) \frac{n_{KS,\sigma}^{(k-1)}(r)}{n_\sigma(r)}. \quad (5.10)$$

Wegen der Eichfreiheit können wir ohne Einschränkung der Allgemeinheit $V_{XC,\sigma}^{(k)} > 0$ voraussetzen. Ist die KS-Dichte in der Iteration $(k-1)$ lokal an der Stelle r zu niedrig (hoch) im Vergleich zur exakten Dichte $n_\sigma(r)$, so wird das neue Potential $V_{XC,\sigma}^{(k)}$ im nächsten Schritt lokal reduziert (erhöht), was wiederum eine größere (kleinere) Dichte bei r zur Folge hat. Zusätzlich werden die Potentiale im Limes $r \rightarrow \infty$ auf eine positive Konstante normiert. Die tatsächlichen Eichkonstanten c_σ der Potentiale $V_{XC,\sigma}^{(k)} > 0$ können allerdings mit diesem Verfahren nicht bestimmt werden (siehe nächster Abschnitt). Ferner ist zu beachten, daß für unpolarisierte ($c_\uparrow = c_\downarrow$) und vollständig polarisierte (c_σ der besetzten Spinzustände) Systeme nur eine Konstante zu berechnen ist, was im nächsten Schritt zu einer eindeutigen Lösung führt. Für partiell polarisierte Systeme müssen beide Konstanten ermittelt werden, was eine zusätzliche Überlegung erfordert (siehe 6.1.3).

Eine analoge Betrachtung für das XC-Vektorpotential liefert

$$A_{XC,\varphi}^{(k)}(r) = A_{XC,\varphi}^{(k-1)}(r) \frac{j_{p,KS,\varphi}^{(k-1)}(r)}{j_{p,\varphi}(r)}. \quad (5.11)$$

[¶]Hier haben wir vernachlässigt, daß $\hat{H}_{0,\sigma}$ via XC-Vektorpotential sich während der Iteration ebenfalls ändert. Dieser Effekt ist aber i.a. klein gegen Änderungen der skalaren Potentiale.

Allerdings führt diese Formel aus zwei Gründen zu nicht konvergenten Ergebnissen: Erstens wird das während der Iteration stark modifizierte skalare XC-Potential als unveränderlich vorausgesetzt, was nicht zutrifft. Zweitens kann die Stromdichte im Gegensatz zur Teilchendichte das Vorzeichen wechseln. Als brauchbare Alternative stellt sich der Ansatz

$$A_{\text{XC},\varphi}^{(k)}(r) = \alpha A_{\text{XC},\varphi}^{(k-1)}(r)(j_{\text{p,KS},\varphi}^{(k-1)}(r) - j_{\text{p},\varphi}(r)) \quad (5.12)$$

mit einer passend gewählten Konstante α heraus.^{||}

Für die numerische Rechnung sind selbstverständlich die üblichen Kunstgriffe für die iterative Lösung von selbstkonsistenten Gleichungssystemen anzuwenden wie z.B. eine sinnvolle Zumischung der alten zu den aktuellen Potentialen, um die Konvergenz des Verfahrens zu erreichen bzw. zu beschleunigen.

Ein weiterer Aspekt, der in diesem Kontext numerisch überprüft wird, ist die Repräsentabilität (vgl. Kapitel 2) der exakten GZ-Dichte des Systems, d.h. als Ergebnis eines (erfolgreichen) Iterationsprozesses erhalten wir ein Potential, so daß die Dichte des KS-GZs mit der exakten Dichte übereinstimmt.

Im folgenden Beispiel ist diese Voraussetzung per definitionem erfüllt: Wir betrachten ein System von sechs Elektronen mit Confinement 3meV ohne Magnetfeld. Im GZ sind die beiden untersten Schalen abgeschlossen, d.h. das System ist unpolarisiert und die paramagnetische Stromdichte ist wegen $L = 0$ identisch Null. Eine DFT-Rechnung, die auf TC-XC-Energiedichten¹⁵³ beruht, liefert die in Abbildung 5.1 dargestellte GZ-Dichte (a) und das XC-Potential (b) als Funktion des Radius (graue, durchgezogene Linie). Die schwarzen, gestrichelten Linien sind das Resultat der Invertierung der KS-Gleichungen. Wie in Abbildung 5.1(a) zu erkennen ist, liegen beide Dichten genau übereinander, was die Qualität des vorgestellten Iterationsschemas demonstriert. Obwohl das XC-Potential des Iterationsschemas die Dichten perfekt reproduziert, stimmt es natürlich nur bis auf eine Konstante mit dem originalen XC-Potential überein.^{**}

5.2.2 Austausch-Korrelations-Energiedichten in lokaler Dichtenäherung

In diesem Abschnitt wenden wir uns der Extraktion von XC-Energiedichten aus den exakten XC-Potentialen zu. Der allgemeine Zusammenhang zwischen XC-Funktional und XC-Potential ist durch die Gleichungen (2.35) und (2.36) gegeben

$$eA_{\text{XC}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{n(\mathbf{r})} \nabla \times \left. \frac{\delta E_{\text{XC}}}{\delta \mathbf{v}(\mathbf{r})} \right|_{\{n_\sigma\}} \quad (5.13)$$

$$V_{\text{XC}\sigma}(\mathbf{r}) = \left. \frac{\partial E_{\text{XC}}}{\partial n_\sigma(\mathbf{r})} \right|_{n_{-\sigma}, \mathbf{v}} - eA_{\text{XC}}(\mathbf{r}) \frac{j_{\text{p}}(\mathbf{r})}{n(\mathbf{r})}. \quad (5.14)$$

^{||}In Kapitel 6 werden wir feststellen, daß die Methode zwar zu konvergenten Ergebnissen führt, aber dennoch nicht optimal ist.

^{**}Nach Berechnung der XC-Energie ist die Konstante bekannt und das XC-Potential könnte entsprechend geeicht werden (vgl. Abschnitt 5.2.2).

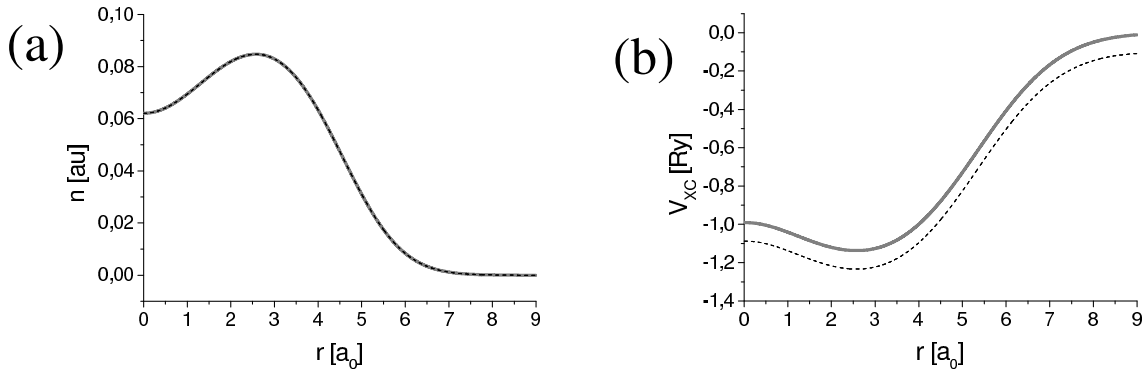


ABBILDUNG 5.1: Die Abbildung zeigt eine Testrechnung für ein unpolarisiertes System von sechs Elektronen in einem Quantendot mit 3meV Confinement-Potential und bei $B = 0$. In (a) sind die GZ-Dichten und in (b) die XC-Potentiale dargestellt. Graue, durchgezogene Linien bezeichnen die Ergebnisse der ursprünglichen DFT/LDA-Rechnung, schwarze, gestrichelte Linien sind Resultate des Extraktionsschemas.

Allerdings erlaubt diese Form aufgrund der Unkenntnis der Funktionale nicht, eine Verbindung zwischen XC-Energie und XC-Potentiale zu konstruieren. Erst die LVS-DA (2.38)

$$E_{XC}[n_\sigma, v] \approx \int dr n(r) \varepsilon_{XC}(n_\sigma(r), v(r)) \quad (5.15)$$

verknüpft XC-Energiedichten und -Potentiale (näherungsweise) miteinander

$$eA_{XC,\varphi}(r) = -\frac{1}{n(r)} \frac{\partial}{\partial r} \left(n(r) \frac{\partial \varepsilon_{XC}}{\partial v}(r) \right) \quad (5.16)$$

$$V_{XC,\sigma}(r) = \varepsilon_{XC}(r) + n(r) \frac{\partial \varepsilon_{XC}}{\partial n_\sigma}(r) - eA_{XC,\varphi}(r) \frac{j_{P,\varphi}(r)}{n(r)}. \quad (5.17)$$

Die obigen Gleichungen werden nach den Ableitungen der XC-Energie bezüglich der Spindichten und der Vortizität aufgelöst

$$\frac{\partial \varepsilon_{XC}}{\partial v}(r) = \frac{1}{n(r)} \left[\int_r^\infty dr'' n(r'') eA_{XC,\varphi}(r'') \right] \quad (5.18)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_{XC}}{\partial n_\sigma}(r) = \frac{1}{n(r)} \left(-\varepsilon_{XC}(r) + V_{XC,\sigma}(r) + eA_{XC,\varphi}(r) \frac{j_{P,\varphi}(r)}{n(r)} \right). \quad (5.19)$$

Dabei nehmen wir für das Integral die (physikalische) Randbedingung

$$\lim_{r \rightarrow \infty} n(r) \frac{\partial \varepsilon_{XC}}{\partial v}(r) = 0 \quad (5.20)$$

an. Anschließend werden die Ergebnisse der Gleichungen (5.18) und (5.19) in die Ableitung der XC-Energiedichte nach dem Radius r eingesetzt

$$\frac{\partial \varepsilon_{XC}(r)}{\partial r} = \sum_\sigma \frac{\partial \varepsilon_{XC}}{\partial n_\sigma} \frac{\partial n_\sigma}{\partial r} + \frac{\partial \varepsilon_{XC}}{\partial v} \frac{\partial v}{\partial r}. \quad (5.21)$$

Nach einigen Umformungen liegt eine inhomogene lineare Differentialgleichung (DGL)

$$\frac{\partial \varepsilon_{XC}(r)}{\partial r} + \frac{\partial \log n}{\partial r}(r) \varepsilon_{XC}(r) = I(r) \quad (5.22)$$

mit der Inhomogenität^{††}

$$\begin{aligned} I(r) = & \frac{1}{n(r)} \sum_{\sigma} (V_{XC,\sigma}(r) + c_{\sigma}) \frac{\partial n_{\sigma}}{\partial r}(r) + e A_{XC,\varphi}(r) \frac{j_{P,\varphi}(r)}{n(r)} \frac{\partial \log n}{\partial r}(r) \\ & + \frac{1}{n(r)} \frac{\partial v}{\partial r}(r) \left[\int_r^{\infty} dr'' n(r'') e A_{XC,\varphi}(r'') \right] \end{aligned} \quad (5.23)$$

vor, die die gesamte Information über die Spindichte- und Vortizitätsabhängigkeit enthält. Die Lösung der homogenen DGL

$$\frac{\partial \varepsilon_{XC}(r)}{\partial r} + \frac{\partial \log n}{\partial r}(r) \varepsilon_{XC}(r) = 0 \quad (5.24)$$

ist durch

$$\varepsilon_{XC}^{\text{hom}}(r) = \alpha / n(r) \quad (5.25)$$

gegeben. Eine spezielle Lösung der DGL können wir mit Hilfe der Variation der Konstanten (z.B. Referenz⁸⁴) unter Verwendung des Ansatzes

$$\varepsilon_{XC}^{\text{spez}}(r) = \beta(r) / n(r) \quad (5.26)$$

berechnen. Für die Funktion $\beta(r)$ erhalten wir eine elementare DGL

$$\frac{\partial \beta}{\partial r}(r) = n(r) I(r), \quad (5.27)$$

die durch Separation der Variablen gelöst werden kann

$$\beta(r) = \int_0^r dr' n(r') I(r') - \beta(0). \quad (5.28)$$

Dann lautet die allgemeine Lösung der DGL (5.22)

$$\varepsilon_{XC}(r) = \varepsilon_{XC}^{\text{hom}}(r) + \varepsilon_{XC}^{\text{spez}}(r) = \frac{\alpha - \beta(0)}{n(r)} + \frac{1}{n(r)} \int_0^r dr' n(r') I(r'). \quad (5.29)$$

^{††}An dieser Stelle berücksichtigen wir in Form der Konstanten c_{σ} , daß die skalaren XC-Potentiale noch nicht geeicht sind (vgl. Paragraph 5.2.1).

Nach Rücksubstitution der Inhomogenität erhalten wir

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\text{XC}}(r) = & \frac{\alpha - \beta(0)}{n(r)} + \frac{1}{n(r)} \int_0^r dr' \left\{ \sum_{\sigma} (V_{\text{XC},\sigma}(r') + c_{\sigma}) \frac{\partial n_{\sigma}}{\partial r'}(r') \right. \\ & \left. + eA_{\text{XC},\varphi}(r') j_{\text{p},\varphi}(r') \frac{\partial \log n}{\partial r'}(r') + \frac{\partial v}{\partial r'}(r') \left[\int_{r'}^{\infty} dr'' n(r'') eA_{\text{XC},\varphi}(r'') \right] \right\} \end{aligned} \quad (5.30)$$

bzw.

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\text{XC}}(r) = & \frac{\alpha - \beta(0) - n_{\sigma}(0) \sum_{\sigma} c_{\sigma}}{n(r)} + \sum_{\sigma} c_{\sigma} \frac{n_{\sigma}(r)}{n(r)} + \frac{1}{n(r)} \int_0^r dr' \left\{ \sum_{\sigma} V_{\text{XC},\sigma}(r') \frac{\partial n_{\sigma}}{\partial r'}(r') \right. \\ & \left. + eA_{\text{XC},\varphi}(r') j_{\text{p},\varphi}(r') \frac{\partial \log n}{\partial r'}(r') + \frac{\partial v}{\partial r'}(r') \left[\int_{r'}^{\infty} dr'' n(r'') eA_{\text{XC},\varphi}(r'') \right] \right\}. \end{aligned} \quad (5.31)$$

Da der Betrag der XC-Energie

$$|E_{\text{XC}}[n_{\sigma}, v]| \approx \int d\mathbf{r} n(r) |\varepsilon_{\text{XC}}(r)| < \infty \quad (5.32)$$

in LVSDA endlich sein muß, wählen wir die Konstante α so, daß $\alpha - \beta(0) - n_{\sigma}(0) \sum_{\sigma} c_{\sigma} = 0$ gilt, und vermeiden dadurch divergente Beiträge; oder anders ausgedrückt: Der Freiheitsgrad α der Lösung der DGL (5.22) wird durch die Forderung einer endlichen XC-Energie in lokaler Dichtenäherung eindeutig bestimmt. Somit erhalten wir als analytische Lösung von (5.22)

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\text{XC}}(r) = & \sum_{\sigma} c_{\sigma} \frac{n_{\sigma}(r)}{n(r)} + \frac{1}{n(r)} \int_0^r dr' \left\{ \sum_{\sigma} V_{\text{XC},\sigma}(r') \frac{\partial n_{\sigma}}{\partial r'}(r') + eA_{\text{XC},\varphi}(r') j_{\text{p},\varphi}(r') \frac{\partial \log n}{\partial r'}(r') \right. \\ & \left. + \frac{\partial v}{\partial r'}(r') \left[\int_{r'}^{\infty} dr'' n(r'') eA_{\text{XC},\varphi}(r'') \right] \right\}. \end{aligned} \quad (5.33)$$

Es bleiben noch die Eichkonstanten c_{σ} der skalaren Potentiale zu berechnen. Eine weitere bisher ungenutzte Randbedingung ist die Übereinstimmung der DFT-GZ-Energie mit der exakten GZ-Energie. Dazu eliminieren wir $V_{\text{XC},\sigma}(\mathbf{r})$ und $A_{\text{XC}}(\mathbf{r})$ aus der DFT-GZ-Energie (2.31) und schreiben sie in der modifizierten Form

$$\begin{aligned} E_{\text{GZ}} = & \sum_{j\sigma} f_{j\sigma} \int d\mathbf{r} \varphi_{j\sigma}^*(\mathbf{r}) \left(\frac{1}{2m^*} (\mathbf{p} + e\mathbf{A}(\mathbf{r}))^2 + V_{\sigma}(\mathbf{r}) \right) \varphi_{j\sigma}(\mathbf{r}) \\ & + \frac{1}{2} \int d\mathbf{r} V_{\text{H}}(\mathbf{r}) n(\mathbf{r}) + E_{\text{XC}}[n_{\sigma}, v]. \end{aligned} \quad (5.34)$$

Daraus können wir die XC-Energie $E_{\text{XC}}[n_{\sigma}, v]$ für die GZ-Dichten exakt(!) extrahieren, da alle anderen Größen bekannt sind: Die KS-Wellenfunktionen sind durch die selbstkonsistente Lösung der KS-Gleichungen gegeben (vgl. 5.2.1). Damit können die Erwar-

tungswerte $\int d\mathbf{r} \varphi_{j\sigma}^*(\mathbf{r}) \left(\frac{1}{2m^*}(\mathbf{p} + e\mathbf{A}(\mathbf{r}))^2 + V_\sigma(\mathbf{r}) \right) \varphi_{j\sigma}(\mathbf{r})$ des nicht-wechselwirkenden Systems berechnet werden. Die Coulomb-Energie und GZ-Energie sind durch das exakte System eindeutig bestimmt. Andererseits gilt für die XC-Energie (5.33) in LVSDA

$$\begin{aligned} E_{\text{XC}}[n_\sigma, v] &\approx \int d\mathbf{r} n(r) \varepsilon_{\text{XC}}(r) \\ &= \sum_\sigma c_\sigma N_\sigma + \int_{r=0}^\infty dr \int_0^r dr' \left\{ \sum_\sigma V_{\text{XC},\sigma}(r') \frac{\partial n_\sigma}{\partial r'}(r') + eA_{\text{XC},\varphi}(r') \times \right. \\ &\quad \left. \times j_{\text{p},\varphi}(r') \frac{\partial \log n}{\partial r'}(r') + \frac{\partial v}{\partial r'}(r') \left[\int_{r'}^\infty dr'' n(r'') eA_{\text{XC},\varphi}(r'') \right] \right\}, \end{aligned} \quad (5.35)$$

woraus $\sum_\sigma c_\sigma N_\sigma$ bestimmbar ist. In zwei Fällen führt diese Nebenbedingung auch zu eindeutigen Ergebnissen: Für unpolarisierte Systeme gilt $c := c_\uparrow = c_\downarrow$ und damit $\sum_\sigma c_\sigma N_\sigma = cN$. Bei vollständiger Polarisation ist dagegen das c_σ der unbesetzten Spinrichtung irrelevant, da das entsprechende $N_\sigma = 0$ ist. Komplizierter ist die Situation im Falle von partieller Polarisation, weil dann eine weitere Randbedingung zur eindeutigen Lösung notwendig ist (vgl. Abschnitt 6.1.3).

Als Beispiel betrachten wir wiederum ein System mit sechs Elektronen und Confinement 3meV, aber jetzt liegt ein Magnetfeld von 3T an ($\hbar\omega_h = 3.9645\text{meV}$). Unter diesen Umständen ist der GZ ein vollständig polarisiertes $\nu = 1$ -QHD (vgl. Abbildung 3.1) mit Drehimpuls $L = -15$, der auch zu einer endlichen paramagnetischen Stromdichte führt. Wir berechneten den GZ mit Hilfe der CSDFT/LVSDA. Allerdings gibt es, wie in Abschnitt 2.3 erwähnt, keine Parametrisierung der XC-Energiedichte als Funktion von (r_s, ξ, v) , sondern nur von (r_s, ξ, f) (2.62). Da der lokale Füllfaktor $f \propto 1/|v|$ indirekt proportional zum Betrag der Vortizität ist, involviert die Koordinatentransformation der XC-Energiedichte von (r_s, ξ, v) zu (r_s, ξ, f) Divergenzen und Unstetigkeiten im XC-Vektorpotential an Stellen mit $v = 0$. In CSDFT-Rechnungen wird es deshalb an den kritischen Stellen entsprechend geglättet.⁸⁵ Der Einfluß dieser Effekte auf Dichten und Energien ist aber im Normalfall vernachlässigbar, da sie üblicherweise am Rand in Bereichen mit niedriger Dichte auftreten. Für unsere Testrechnungen ist eine Parametrisierung als Funktion von (r_s, ξ, f) allerdings ungeeignet. Deshalb verwenden wir an dieser Stelle eine rein fiktive, unphysikalische Parametrisierung für die XC-Energiedichte

$$\varepsilon_{\text{XC}}(r_s, \xi, v) = \varepsilon_{\text{XC}}^{\text{Test}}(r_s, v) + \varepsilon_{\text{XC}}^{\text{TC}}(r_s, \xi) \quad (5.36)$$

mit

$$\varepsilon_{\text{XC}}^{\text{Test}}(r_s, v) = e^{-r_s - v^2}, \quad (5.37)$$

die aber unseren Zwecken vollauf genügt. Abbildung 5.2 zeigt die Ergebnisse der CSDFT-Rechnung. In (a), (b) und (c) sind die GZ-Dichte, die paramagnetische Stromdichte und die Vortizität dargestellt, in (d) bzw. (e) sind die Graphen des skalaren XC-Potentials bzw. des XC-Vektorpotentials abgebildet. Nach Lösung der DGL (5.22) finden wir eine XC-Energiedichte als Funktion des Radius (schwarze, gestrichelte Linie in Abbildung 5.2(f)), die exakt der ursprünglichen Parametrisierung entspricht (graue,

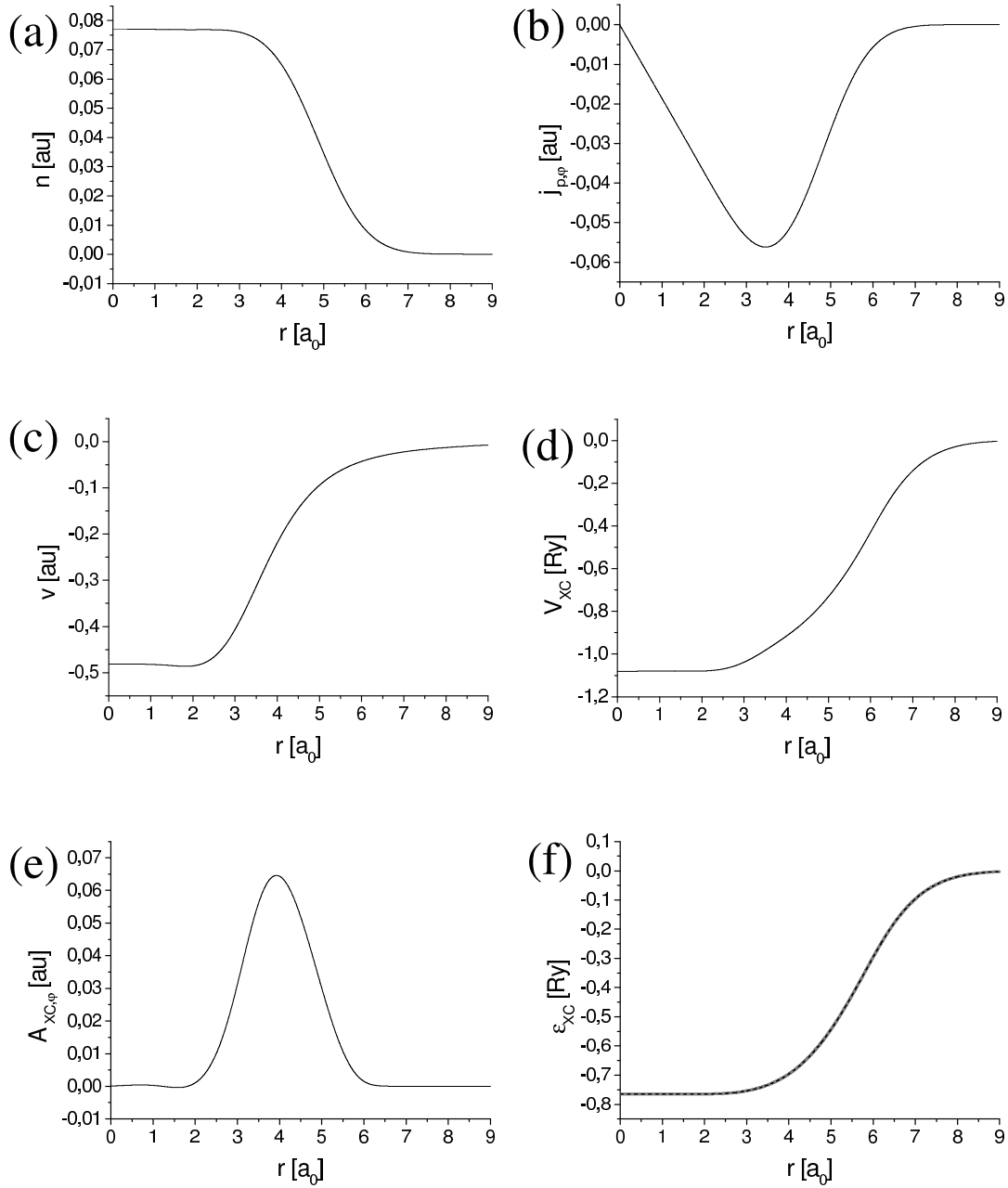


ABBILDUNG 5.2: Die Abbildung zeigt eine Testrechnung für ein unpolarisiertes System von sechs Elektronen in einem Quantendot mit 3meV Confinement-Potential und bei $B = 3T$. (a) zeigt die GZ-Dichte, (b) die paramagnetische Stromdichte, (c) die Vortizität, (d) das skalare XC-Potential, (e) das XC-Vektorpotential und (f) die XC-Energiedichte. In (f) kennzeichnet die graue, durchgezogene Linie das Ergebnis der ursprünglichen CSDFT/LVSDA-Rechnung; die schwarze, gestrichelte Linie ist das Resultat der DGL (5.33).

durchgezogene Linie), was eindrucksvoll die Selbstkonsistenz des Extraktionsverfahrens demonstriert.

Als Ergebnis der Invertierung des LVSDA-Formalismus erhalten wir eine XC-Energiedichte als Funktion des Radius. Da auch Spindichten und Vortizität in Abhängigkeit von r bekannt sind, kann r eliminiert werden, wodurch wir zu der gewohnten Darstellung der XC-Energiedichte als Funktion von (r_s, ξ, v) gelangen. Wie schon mehrfach betont wurde, geht in die obige Rechnung die lokale Dichtenäherung ein. Als Konsequenz dieser Approximation ist die Interpretation der XC-Energien als Größen homogener Systeme nicht in allen Dichtebereichen korrekt, da nicht-lokale Effekte im Formalismus unberücksichtigt bleiben. Dieser Aspekt findet bei der Interpretation der Ergebnisse im folgenden Kapitel besondere Beachtung.

5.3 Klassifizierung der Systeme

Im folgenden werden wir die zu untersuchenden Systeme nach zwei verschiedenen Kriterien unterscheiden: Ein Aspekt ist der Polarisationsgrad des Systems, der in die Kategorien unpolarisiert, teilweise polarisiert und vollständig polarisiert eingeteilt ist. Andererseits spielt die paramagnetische Stromdichte eine wichtige Rolle. Sie verschwindet nur für GZe mit $L = 0$, bei GZen mit endlichem Drehimpuls trägt sie via Vortizität zu XC-Effekten bei.

5.4 Das Zweielektronen-System

Der Spezialfall eines Quantendots mit zwei Elektronen erlaubt für spezielle Werte von ω_h eine komplette analytische Berechnung von GZ-Dichten und XC-Potentialen. In den beiden folgenden Abschnitten behandeln wir den unpolarisierten und den vollständig polarisierten GZ des Systems. Hintergrund der Rechnung ist eine Untersuchung der exakten Asymptotik der XC-Potentiale im Vergleich mit den numerischen Rechnungen in Kapitel 6. Ähnliche Überlegungen zu Zweielektronen-Systemen in dreidimensionalen harmonischen Potentialen (ohne Magnetfeld) finden sich bei Filippi et al. (1994⁴³).

5.4.1 Das unpolarisierte Zweielektronen-System

Für zwei Elektronen kann der Hamilton-Operator (1.27) in einen CM- und Relativanteil zerlegt werden, so daß effektiv zwei Einteilchen-Schrödinger-Gleichungen zu lösen sind. Für die Relativbewegung zeigt Taut (1994¹⁵⁶) mit Hilfe der Rekursionsmethode, daß für den $L = 0$ -GZ bei $B = 0$ und $\hbar\omega_0 = 2\text{Ry}$ die Relativwellenfunktion durch

$$\varphi_{\text{rel}}(r) = C_{\text{rel}} (1 + r) e^{-r^2/4} \quad (5.38)$$

$$C_{\text{rel}} = \frac{1}{\sqrt{2\pi (\sqrt{2\pi} + 3)}} \quad (5.39)$$

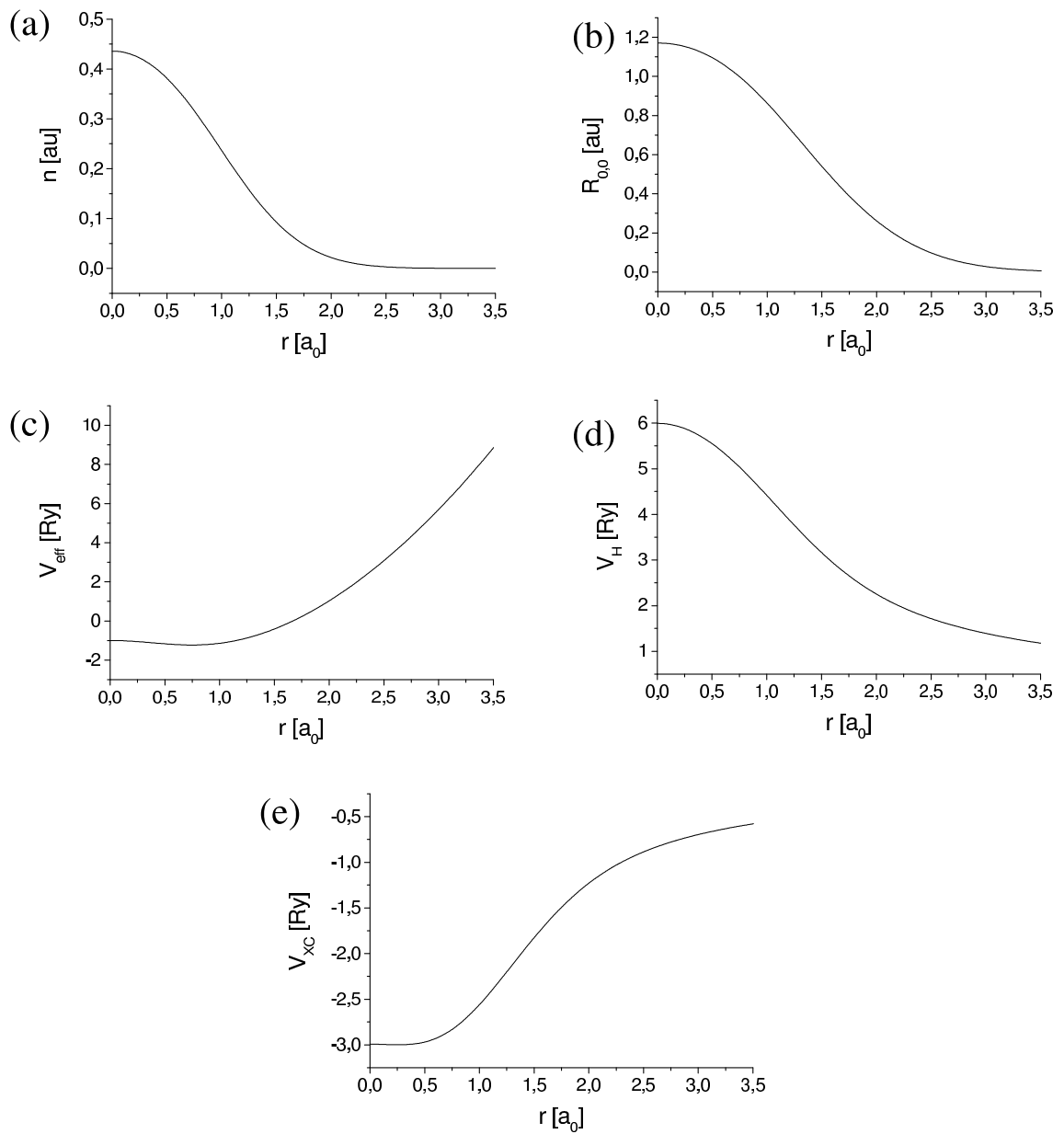


ABBILDUNG 5.3: Die Abbildung zeigt die Ergebnisse der analytischen Rechnung für ein unpolarisiertes System von zwei Elektronen in einem Quantendot mit 2Ry Confinement-Potential und bei $B = 0\text{T}$. (a) zeigt die GZ-Dichte, (b) die radiale KS-Wellenfunktion, (c) das effektive skalare Potential, (d) das Hartree-Potential und (e) das XC-Potential.

gegeben ist.^{††} Der GZ für die CM-Bewegung ist trivial

$$\varphi_{\text{CM}}(R) = C_{\text{CM}} e^{-R^2} \quad (5.40)$$

$$C_{\text{CM}} = \sqrt{\frac{2}{\pi}}. \quad (5.41)$$

Da die Gesamtwellenfunktion

$$\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \varphi_{\text{CM}}(|\mathbf{r}_1 + \mathbf{r}_2|/2) \varphi_{\text{rel}}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) \quad (5.42)$$

offensichtlich positiv ist, muß sie für das Zweielektronen-System bei $B = 0$ der Singulett-GZ sein;¹³⁶ die Energie beträgt 6Ry. Daraus erhalten wir mit Hilfe von Gradshteyn & Ryzhik (1980⁵⁰) und Maple¹⁰³ die Grundzustandsdichte (Abbildung 5.3(a))

$$\begin{aligned} n(r) &= \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \Psi^*(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \hat{n}(\mathbf{r}) \Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \\ &= \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \Psi^*(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \sum_{j=1}^2 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) \Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \\ &= 2 \int d\mathbf{r}_2 \Psi^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}_2) \Psi(\mathbf{r}, \mathbf{r}_2) \\ &= 2 \int d\mathbf{r}' \Psi^*(\mathbf{r}, \mathbf{r} + \mathbf{r}') \Psi(\mathbf{r}, \mathbf{r} + \mathbf{r}') \\ &= 2 C_{\text{CM}}^2 C_{\text{rel}}^2 e^{-2r^2} \int d\mathbf{r}' r' (1 + r')^2 e^{-r'^2} \int_{\beta=0}^{2\pi} d\beta e^{-2rr' \cos(\beta)} \\ &= 4\pi C_{\text{CM}}^2 C_{\text{rel}}^2 e^{-2r^2} \int d\mathbf{r}' r' (1 + r')^2 e^{-r'^2} I_0(2rr') \\ &= 4\pi C_{\text{CM}}^2 C_{\text{rel}}^2 e^{-2r^2} \left(e^{r^2} + \frac{1}{2} r^2 e^{r^2} + \frac{1}{2} \sqrt{\pi} e^{r^2/2} I_0(r^2/2) + \frac{1}{2} \sqrt{\pi} r^2 e^{r^2/2} I_0(r^2/2) \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{2} \sqrt{\pi} r^2 e^{r^2/2} I_1(r^2/2) \right). \end{aligned} \quad (5.43)$$

Im KS-System suchen wir nun ein effektives Potential, das die GZ-Dichte $n(r)$ exakt reproduziert. Aufgrund des Zusammenhangs zwischen Dichte und Wellenfunktion im KS-System

$$n(\mathbf{r}) = \sum_{j,l,\sigma} f_{j,l,\sigma} \phi_{j,l,\sigma}^*(\mathbf{r}) \phi_{j,l,\sigma}(\mathbf{r}) \quad (5.44)$$

gilt für ein Zweielektronen-System im GZ, d.h. nur die KS-Zustände $\phi_{j,l,\sigma}(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{il\varphi} R_{j,l}(r)$ mit $j = l = 0$ und $\sigma = \pm 1$ sind besetzt,

$$R_{0,0}(r) = \sqrt{\pi n(r)}. \quad (5.45)$$

^{††} Alle Größen in Abschnitt 5.4 sind in atomaren Einheiten (a_0 , Ry) gegeben.

Die radiale Abhängigkeit von $R_{0,0}(r)$ ist in Abbildung 5.3(b) dargestellt. Damit können wir durch Inversion der KS-Schrödinger-Gleichung für $\phi_{0,0,\pm 1}(r)$ das effektive Einteilchen-Potential (vgl. Abbildung 5.3(c)) bis auf eine Konstante $\varepsilon_{0,0,\pm 1}$ berechnen

$$V_{\text{eff}}(r) = r^2 + V_{\text{H}}(r) + V_{\text{XC}}(r) - \varepsilon_{0,0,\pm 1} = \frac{\left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) \right] R_{0,0}(r)}{R_{0,0}(r)} \quad (5.46)$$

und daraus das exakte XC-Potential (Abbildung 5.3(e)) gewinnen, da mit der Dichte auch das Hartree-Potential $V_{\text{H}}(r)$ (Abbildung 5.3(d)) bekannt ist

$$V_{\text{XC}}(r) = \varepsilon_{0,0,\pm 1} - r^2 - V_{\text{H}}(r) + \frac{\left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) \right] R_{0,0}(r)}{R_{0,0}(r)}. \quad (5.47)$$

Insbesondere die Asymptotik der exakten Größen ist ein interessanter Aspekt der analytischen Rechnung. So ist die Dichte $n(r)$ im Limes großer Radien durch

$$\lim_{r \rightarrow \infty} n(r) = 2\pi C_{\text{CM}}^2 C_{\text{rel}}^2 r^2 e^{-r^2} \quad (5.48)$$

und die Radialwellenfunktion $R_{0,0}(r)$ durch

$$\lim_{r \rightarrow \infty} R_{0,0}(r) = \sqrt{2\pi} C_{\text{CM}} C_{\text{rel}} r e^{-r^2/2} \quad (5.49)$$

gekennzeichnet. Das effektive Potential ist asymptotisch parabolisch

$$\lim_{r \rightarrow \infty} V_{\text{eff}}(r) = r^2 - 4 + 2/r + 1/r^2 + O(r^{-3}). \quad (5.50)$$

Da das Hartree-Potential mit

$$\lim_{r \rightarrow \infty} V_{\text{H}}(r) = \frac{4}{r} + O(r^{-2}) \quad (5.51)$$

gegen Null konvergiert, wollen wir voraussetzen, daß das XC-Potential so geeicht ist ($\varepsilon_{0,0,\pm 1} = 4$), daß es im Limes $r \rightarrow \infty$ verschwindet⁹¹

$$\lim_{r \rightarrow \infty} V_{\text{XC}}(r) = -2/r + 1/r^2 + O(r^{-3}). \quad (5.52)$$

Der Term $-2/r$ im XC-Potential ist eine Konsequenz der im Fall von zwei Elektronen starken Selbstwechselwirkung. Ihr Potential wird vom Austausch-Potential

$$V_{\text{X}}(r) = -\frac{1}{2} V_{\text{H}}(r), \quad (5.53)$$

das im Singulett-Zustand dem halben Hartree-Potential entspricht, genau kompensiert.⁴³ Der große Anteil der Selbstwechselwirkung am XC-Potential macht das Zweielektronen-System nur bedingt geeignet für die Extraktion von XC-Energiedichten. Deshalb werden wir uns in Kapitel 6 für unpolarisierte Systeme ohne Stromdichte auf Sechselektronen-Systeme, die zwei abgeschlossene Schalen bei $B = 0$ aufweisen, beschränken.

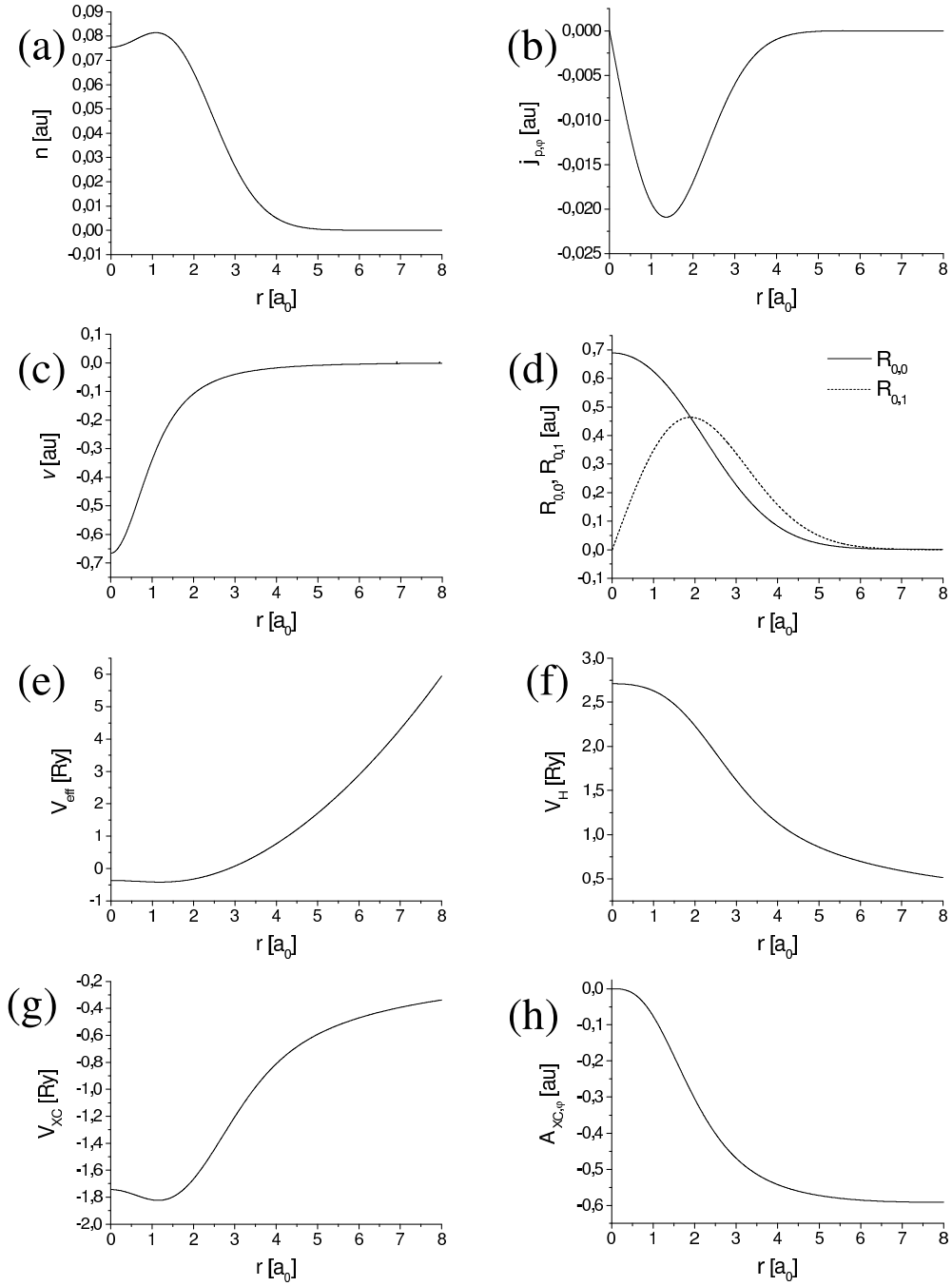


ABBILDUNG 5.4: Die Abbildung zeigt die Ergebnisse der analytischen Rechnung für ein unpolarisiertes System von zwei Elektronen in einem Quantentdot mit $2/3\text{Ry}$ Confinement-Potential und bei $B = 0\text{T}$. (a) zeigt die GZ-Dichte, (b) die paramagnetische GZ-Stromdichte, (c) die Vortizität, (d) die radialen KS-Wellenfunktionen, (e) das effektive skalare Potential, (f) das Hartree-Potential, (g) das skalare XC-Potential und (h) die Azimutalkomponente des XC-Vektorpotentials.

5.4.2 Das vollständig polarisierte Zweielektronen-System

Das einfachste vollständig polarisierte Zweielektronen-System mit nicht verschwindender Stromdichte ist das $\nu = 1$ -Droplet mit $L = -1$, $S = 1$ und $S_z = -1$. Wiederum nutzen wir für zwei Elektronen die Separierbarkeit des Hamilton-Operators (1.27) in einen CM- und Relativanteil aus. Wir betrachten jetzt den $L = -1$ -GZ bei $\hbar\omega_h = 2/3\text{Ry}$, der aus Symmetriegründen¹⁵⁶ ein Spin-Triplett-Zustand ist. Für die Relativbewegung findet Taut (1994¹⁵⁶) mit Hilfe der Rekursionsmethode

$$\varphi_{\text{rel}}(r) = C_{\text{rel}} r (1 + r/3) e^{-r^2/12} \quad (5.54)$$

$$C_{\text{rel}} = \frac{1}{\sqrt{2\pi (9\sqrt{6\pi} + 42)}}. \quad (5.55)$$

Der GZ für die CM-Bewegung ist

$$\varphi_{\text{CM}}(R) = C_{\text{CM}} e^{-R^2/3} \quad (5.56)$$

$$C_{\text{CM}} = \sqrt{\frac{2}{3\pi}}. \quad (5.57)$$

Somit lautet die Gesamtwellenfunktion

$$\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \varphi_{\text{CM}}(|\mathbf{r}_1 + \mathbf{r}_2|/2) \varphi_{\text{rel}}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|), \quad (5.58)$$

ihre Eigenenergie beträgt $8/3\text{Ry}$.

Daraus können wir analog zu Abschnitt 5.4.1 mit Hilfe von Gradshteyn & Ryzhik (1980⁵⁰) und Maple¹⁰³ die GZ-Dichte (Abbildung 5.4(a))

$$\begin{aligned} n(r) = 4\pi C_{\text{CM}}^2 C_{\text{rel}}^2 e^{-2r^2/3} & \left(\frac{15}{2} e^{r^2/3} + \frac{7}{2} r^2 e^{r^2/3} + \frac{1}{6} r^4 e^{r^2/3} + \frac{9}{4} \sqrt{3\pi} e^{r^2/6} I_0(r^2/6) \right. \\ & + \frac{3}{2} \sqrt{3\pi} r^2 e^{r^2/6} I_0(r^2/6) + \frac{1}{6} \sqrt{3\pi} r^4 e^{r^2/6} I_0(r^2/6) \\ & \left. + \sqrt{3\pi} r^2 e^{r^2/6} I_1(r^2/6) + \frac{1}{6} \sqrt{3\pi} r^4 e^{r^2/6} I_1(r^2/6) \right), \end{aligned} \quad (5.59)$$

die Azimutalkomponente der paramagnetischen GZ-Stromdichte (Abbildung 5.4(b))

$$\begin{aligned} j_{p,\varphi}(r) = -\frac{2\pi C_{\text{CM}}^2 C_{\text{rel}}^2}{3(\hbar/\text{Ry})} r e^{-r^2/2} & \left(30 e^{r^2/6} + 2r^2 e^{r^2/6} + 9\sqrt{3\pi} I_0(r^2/6) + 2\sqrt{3\pi} r^2 I_0(r^2/6) \right. \\ & \left. + 3\sqrt{3\pi} I_1(r^2/6) + 2\sqrt{3\pi} r^2 I_1(r^2/6) \right) \end{aligned} \quad (5.60)$$

sowie die Vortizität (oder genauer ihre z-Komponente) (Abbildung 5.4(c))

$$v(r) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{j_{p,\varphi}(r)}{n(r)} \right) \quad (5.61)$$

berechnen.

Im KS-System suchen wir nun effektive Potentiale, die die GZ-Dichten ($n(r)$, $j_{p,\varphi}(r)$) exakt reproduzieren. Dabei nutzen wir aus, daß wir uns auf den Fall $B = 0$ zurückziehen können. Es gilt der Zusammenhang zwischen Dichte und KS-Wellenfunktionen $\phi_{j,l,\sigma}(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{im\varphi} R_{j,l}(r)$

$$n(r) = \sum_{j,l,\sigma} f_{j,l,\sigma} \phi_{j,l,\sigma}^*(r) \phi_{j,l,\sigma}(r) \quad (5.62)$$

bzw. paramagnetischer Stromdichte und Wellenfunktion im KS-System

$$j_{p,\varphi}(r) = \frac{2}{(\hbar/Ry)r} \sum_{j,l,\sigma} f_{j,l,\sigma} l \phi_{j,l,\sigma}^*(r) \phi_{j,l,\sigma}(r). \quad (5.63)$$

In der $\nu = 1$ -Konfiguration, bei der jeweils der unterste Zustand des $l = 0$ - ($\phi_{0,0,-1}(r)$) und des $l = -1$ -Unterraums ($\phi_{0,-1,-1}(r)$) mit einem Spin-down-Elektron besetzt sind, folgen

$$R_{0,1}(r) = \sqrt{\pi(\hbar/Ry)r j_{p,\varphi}(r)} \quad (5.64)$$

und

$$R_{0,0}(r) = \sqrt{2\pi n(r) - R_{0,1}^2(r)}. \quad (5.65)$$

Die radialen KS-Wellenfunktionen $R_{0,0}(r)$ und $R_{0,1}(r)$ sind in Abbildung 5.4(d) dargestellt.

Damit können wir durch Inversion der KS-Schrödinger-Gleichung für $\phi_{0,0,-1}(r)$ das effektive skalare Einteilchen-Potential (vgl. Abbildung 5.4(e)) bis auf eine Konstante $\varepsilon_{0,0,-1}$ berechnen

$$V_{\text{eff}}(r) = r^2/9 + V_H(r) + V_{\text{XC}}(r) - \varepsilon_{0,0,-1} = \frac{\left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r}\right)\right] R_{0,0}(r)}{R_{0,0}(r)}. \quad (5.66)$$

Insbesondere involviert die KS-Gleichung für Zustände mit $l = 0$ nicht das XC-Vektorpotential. Da bei gegebener Dichte auch das Hartree-Potential $V_H(r)$ (Abbildung 5.4(f)) bekannt ist, folgt für das exakte skalare XC-Potential (Abbildung 5.4(g))

$$V_{\text{XC}}(r) = \varepsilon_{0,0,-1} - r^2/9 - V_H(r) + \frac{\left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r}\right)\right] R_{0,0}(r)}{R_{0,0}(r)} \quad (5.67)$$

bis auf eine Eichkonstante $\varepsilon_{0,0,-1}$. Mit Hilfe der KS-Wellenfunktion $\phi_{0,-1,-1}(r)$ eröffnet sich nun ein Zugang zum XC-Vektorpotential (Abbildung 5.4(h)). Wir lösen die KS-Schrödinger-Gleichung nach $A_{\text{XC},\varphi}(r)$, substituieren das zuvor erhaltene skalare XC-Vektorpotential $V_{\text{XC}}(r)$ und erhalten

$$eA_{\text{XC},\varphi}(r) = \frac{\hbar}{Ry} \frac{r}{2} \left(\frac{1}{r^2} - \frac{\left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r}\right)\right] R_{0,1}(r)}{R_{0,1}(r)} + \frac{\left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r}\right)\right] R_{0,0}(r)}{R_{0,0}(r)} + \varepsilon_{0,0,-1} - \varepsilon_{0,-1,-1} \right). \quad (5.68)$$

Die Singularität des ersten Terms $1/r^2$ der Klammer wird durch den zweiten Term gehoben, da beide Terme zusammen die kinetische Energiedichte des Zustands $\phi_{0,-1,-1}(\mathbf{r})$ beschreiben, die bei $r = 0$ endlich ist.

Wiederum liegt unser Augenmerk auf der Asymptotik der beteiligten Größen. So werden die Dichten und die Vortizität im Limes großer Radien durch

$$\lim_{r \rightarrow \infty} n(r) = \frac{2\pi}{3} C_{\text{CM}}^2 C_{\text{rel}}^2 r^4 e^{-r^2/3} \quad (5.69)$$

$$\lim_{r \rightarrow \infty} j_{\text{p},\varphi}(r) = \frac{4\pi C_{\text{CM}}^2 C_{\text{rel}}^2}{3(\hbar/\text{Ry})} r^3 e^{-r^2/3} \quad (5.70)$$

$$\lim_{r \rightarrow \infty} v(r) = \frac{1}{\hbar/\text{Ry}} (-24/r^4 + 54/r^5 + O(r^{-6})) \quad (5.71)$$

und die Radialwellenfunktion $R_{0,0}(r)$ durch

$$\lim_{r \rightarrow \infty} R_{0,0}(r) = 2\sqrt{2}\pi C_{\text{CM}} C_{\text{rel}} r e^{-r^2/6} \quad (5.72)$$

$$\lim_{r \rightarrow \infty} R_{0,1}(r) = \frac{2\pi C_{\text{CM}} C_{\text{rel}}}{\sqrt{3}} r^2 e^{-r^2/6} \quad (5.73)$$

beschrieben. Das effektive Potential ist asymptotisch parabolisch

$$\lim_{r \rightarrow \infty} V_{\text{eff}}(r) = \frac{1}{9}r^2 - \frac{4}{3} + \frac{3}{2r} + \frac{3}{4r^2} + O(r^{-3}). \quad (5.74)$$

Da das Hartree-Potential mit

$$\lim_{r \rightarrow \infty} V_{\text{H}}(r) = \frac{4}{r} + O(r^{-2}). \quad (5.75)$$

gegen Null konvergiert, wollen wir voraussetzen, daß das XC-Potential so geeicht ist ($\varepsilon_{0,0,-1} = 4/3$), daß es im Limes $r \rightarrow \infty$ verschwindet⁹¹

$$\lim_{r \rightarrow \infty} V_{\text{XC}}(r) = -\frac{5}{2r} + \frac{3}{4r^2} + O(r^{-3}). \quad (5.76)$$

In der Asymptotik des XC-Vektorpotentials haben wir die KS-Energie $\varepsilon_{0,-1,-1} = 2$ so bestimmt, daß $A_{\text{XC},\varphi}(r)$ im Limes großer Radien nicht divergiert*

$$\lim_{r \rightarrow \infty} A_{\text{XC},\varphi}(r) = \frac{\hbar}{\text{Ry}} \left(-\frac{1}{4} - \frac{7}{8r} + O(r^{-2}) \right). \quad (5.77)$$

Damit sind die externen Potentiale ($V_{\text{XC}}(r)$, $A_{\text{XC},\varphi}(r)$) nun eindeutig bestimmt.

*Dies ist sinnvoll, da wir bei $B = 0$ arbeiten. Ein Beitrag der Form $A_{\text{XC},\varphi}(r) = \frac{B'}{2}r$ entspräche einem externen Magnetfeld $\mathbf{B}' = (0, 0, B')$.

KAPITEL 6

Extrahierte Austausch-Korrelations-Energiedichten

In diesem Kapitel sind die numerischen Ergebnisse für XC-Potentiale und XC-Energiedichten zusammengefaßt. Es ist gegliedert gemäß der Klassifizierung der Systeme im vorangegangenen Kapitel. Die zugrunde liegenden Referenzdichten und Energien für die GZe stammen aus ED-Rechnungen; die Extraktion der XC-Potentiale und -Energiedichten erfolgt hauptsächlich mit den in Kapitel 5 vorgestellten numerischen Methoden.

6.1 Systeme ohne paramagnetische Stromdichte

Zunächst untersuchen wir Systeme ohne paramagnetische Stromdichte, d.h. mit Drehimpuls $L = 0$, in denen folglich auch keine Korrekturen durch XC-Vektorpotentiale zu erwarten sind. Damit hängt die XC-Energiedichte für unpolarisierte und vollständig polarisierte Systeme nur vom Dichteparameter r_s ab und für teilweise polarisierte QDs zusätzlich von der Polarisation ξ .

6.1.1 Unpolarisierte Systeme

Unpolarisierte Systeme sind dadurch charakterisiert, daß jedes KS-Niveau mit je einem Spin-up- und einem Spin-down-Elektron besetzt ist. Damit liegt natürlich eine gerade Teilchenzahl N vor, und die N -Teilchen-KS-Wellenfunktion ist eine Eigenfunktion des Gesamtspinoperators.

Im folgenden untersuchen wir QDs mit sechs Elektronen, d.h. abgeschlossenen Schalen, für verschiedene Stärken des Confinement-Potentials.* Im Einteilchen-Bild ist der

*Ein System mit zwei Elektronen, bei dem die erste Schale abgeschlossen ist, eignet sich aufgrund der starken Selbstwechselwirkungseffekte nur bedingt zur Extraktion von XC-Energiedichten. Für drei oder mehr abgeschlossene Schalen, d.h. mindestens 12 Elektronen, ist die ED nicht mit ausreichender Genauigkeit durchführbar.

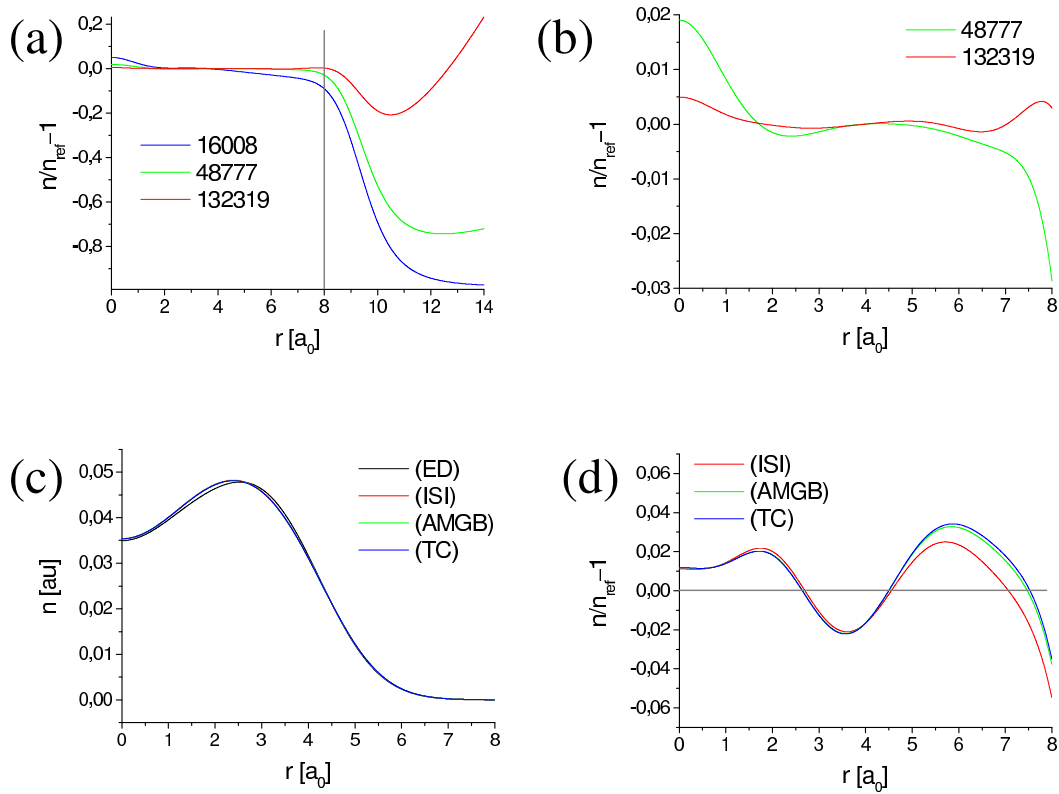


ABBILDUNG 6.1: Die Abbildungen (a) und (b) sind Konvergenztests für die ED-GZ-Dichten. Sie zeigen den relativen Fehler der Dichte bei Verwendung von 16008, 48777 und 132319 Slater-Determinanten im Vergleich zur Referenzdichte, die mit 326120 Slater-Determinanten berechnet wurde. (c) stellt die GZ-Dichte aus DFT mit verschiedenen Parametrisierungen (ISI, AMGB, TC) der ED-GZ-Dichte gegenüber. In (d) ist der relative Fehler der DFT im Vergleich zur ED dargestellt.

Schalenabschluß für sechs Teilchen durch die Besetzung der Zustände der beiden untersten Schalen mit Spin-up- und Spin-down-Elektronen charakterisiert.

Bevor wir uns der numerischen Berechnung von XC-Potentialen und -Energiedichten widmen, soll anhand eines Beispiels die Genauigkeit der GZ-Dichte aus der ED überprüft werden. Für ein Confinement-Potential von $\hbar\omega_0 = 3.32\text{meV}$ zeigen die Abbildungen 6.1(a), (b) den relativen Fehler in der GZ-Dichte in Abhängigkeit von der Zahl der in der ED verwendeten Slater-Determinanten. Der Referenzrechnung selbst liegen 326120 Slater-Determinanten zugrunde. Aus Abbildung 6.1(b) wird deutlich, daß eine gute Konvergenz der Dichte für Radien bis $8a_0$ vorliegt. Erst bei größeren Radien bzw. Dichten, die weit im exponentiell abklingenden Teil liegen, kann die Dichte aufgrund der abgeschnittenen Basis nicht mehr korrekt dargestellt werden. Somit liefert der Konvergenztest auch einen Abschneideradius[†] für die Berechnung der XC-Potentiale und -Energiedichten.

[†]Der Abschneideradius hängt natürlich von den jeweiligen Systemparametern ab.

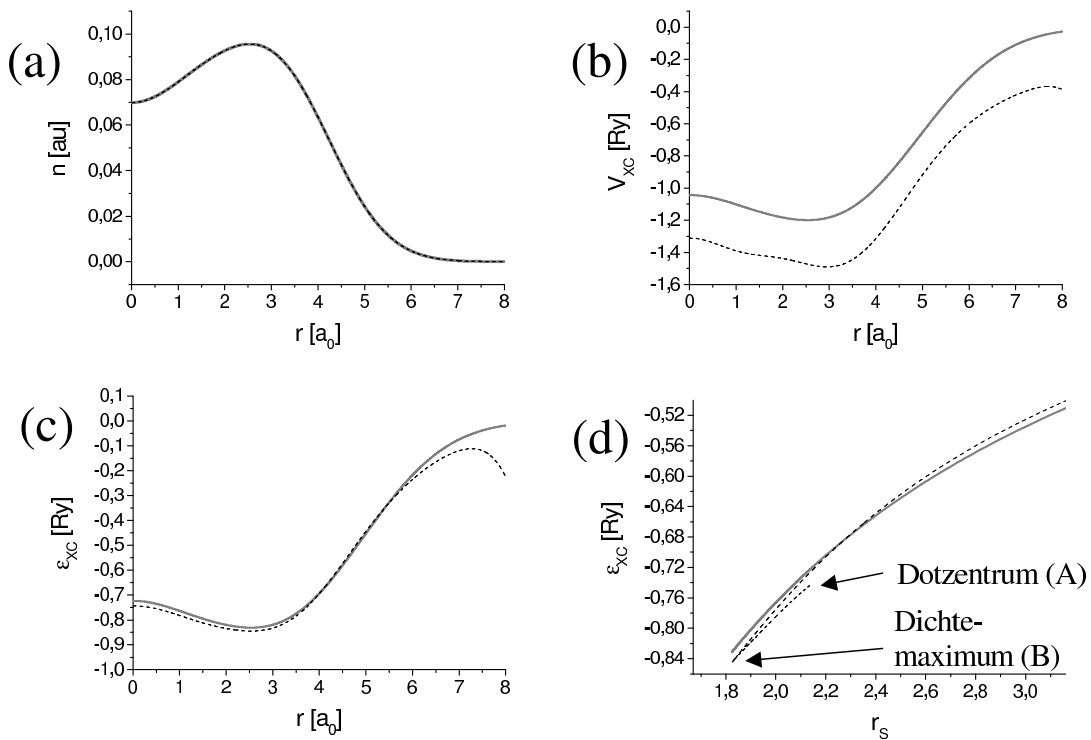


ABBILDUNG 6.2: Diese Abbildung zeigt die Inversion der KS-Gleichungen für ein System von sechs Elektronen mit einem Confinement-Potential von 3.32meV. Das XC-Potential (schwarze, gestrichelte Linie) in (b) reproduziert das Dichteprofil der ED (graue, durchgezogene Linie in (a)). In (b) ist zum Vergleich das TC-XC-Potential in einer grauen, durchgezogenen Linie dargestellt. (c) zeigt die TC-XC-Energiedichte (grau, durchgezogen) versus extrahierter XC-Energiedichte (schwarz, gestrichelt). In (d) sind dieselben Größen wie in (c) zu sehen, aber entsprechend gegen den Dichteparameter r_s aufgetragen.

Im nächsten Schritt vergleichen wir für dasselbe System die GZ-Dichte aus ED mit der der DFT/LDA unter Verwendung der bekannten Parametrisierungen, die wie in Abschnitt 2.3 mit TC¹⁵³, ISI¹⁴⁵ und AMGB⁷ bezeichnet werden. Die Dichten sind in Abbildung 6.1(c), die relativen Abweichungen zur ED-Dichte in (d) dargestellt. Die Unterschiede in der Dichte zwischen TC-, ISI- und AMGB-Parametrisierung sind minimal, die charakteristischen Abweichungen zur ED sind bei allen DFT-Rechnungen gleich. So überschätzt die DFT im Vergleich zur ED die Dichte im Zentrum, während sie die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen bei mittleren Radien ($3a_0 < r < 5a_0$) unterschätzt. Dagegen existieren bei den DFT-GZ-Energien durchaus deutliche Unterschiede. Im Vergleich zur ED (90.2383meV) schneidet ISI mit (90.2566meV) am besten ab. Die Differenz zwischen AMGB (90.5088meV) und TC (90.5303meV) ist erwartungsgemäß gering.

Im Anschluß an die Diskussion der Unterschiede in der Dichte stellt sich die Frage, welche Auswirkungen sie auf das XC-Potential und die XC-Energiedichte haben, falls

wir die ED-Dichten zugrundelegen und die KS-Gleichungen gemäß der in Abschnitt 5.2.1 vorgestellten Methode invertieren. Abbildung 6.2 faßt das Ergebnis der Rechnung zusammen. (b) zeigt das (nicht geeichte) XC-Potential (schwarze, gestrichelte Linie), das die GZ-Dichte der ED in (a) exakt reproduziert. Zum Vergleich ist in (b) auch das XC-Potential, das auf der TC-Parametrisierung basiert, dargestellt (graue, durchgezogene Linie). Nach dem Lösen der Differentialgleichung (5.22) erhalten wir die XC-Energiedichte als Funktion des Radius (c). Die aus der ED extrahierten Werte liegen für kleine Radien deutlich unterhalb der TC-Referenzwerte. Zwischen $r = 4a_0$ und $5.5a_0$, d.h. im Bereich des exponentiellen Abfalls der Dichte, ist die TC-XC-Energiedichte geringer. Ab $r = 5.5a_0$ schließt sich ein Bereich an, in dem die Dichte gegenüber ihrem Maximum schon stark abgefallen ist. In diesem Regime sind die Vorhersagen der extrahierten XC-Energiedichte problematisch. Statt gegen Null zu konvergieren wie die Referenzkurve, weist sie ein Maximum auf und strebt gegen negative Werte. Dieses lokale Maximum am Rand tritt auch schon im XC-Potential in (b) auf. Ein ähnliches Verhalten finden wir im Fall des Zweielektronen-Systems, wo analytische Ergebnisse vorliegen, nicht (vgl. Abbildung 5.3). Deshalb wollen wir als Arbeitshypothese voraussetzen, daß das asymptotische Verhalten für das XC-Potential aus dem Zweielektronen-System auf alle Elektronenzahlen extrapoliert werden kann, und annehmen, daß V_{XC} für große Radien gegen Null konvergiert. Vor diesem Hintergrund ist das lokale Maximum im XC-Potential (b) und in der XC-Energiedichte (c) als Konsequenz der fehlenden Genauigkeit in der Darstellung der GZ-Dichten in der ED zu interpretieren. Durch das Abschneiden des Hilbertraums für Vielteilchen-Zustände in der ED kann die exakte GZ-Dichte nicht mehr hinreichend genau repräsentiert werden. Ein anderer möglicher Grund für das Randverhalten der extrahierten Größen, nämlich nicht-lokale Effekte, können dagegen ausgeschlossen werden: Die Divergenz von $(\partial n(r)/\partial r)/n(r)$ liegt sowohl für zwei als auch für sechs Elektronen vor, aber nur für sechs Elektronen treten Schwierigkeit in der Asymptotik auf. Wir wollen allerdings noch speziell darauf hinweisen, daß die Eichung der extrahierten XC-Energiedichte mittels Gleichung (5.35) von diesen Problemen weitgehend unberührt bleibt: Da die Dichte an der Stelle des Maximums in der XC-Energiedichte schon stark gegenüber dem Dichtemaximum abgefallen ist, sind die divergenten XC-Energiedichten im Integral so gering gewichtet, daß sie keine Rolle spielen.[‡]

In (d) ist die XC-Energiedichte nicht mehr gegen den Radius, sondern gegen den dimensionslosen Dichteparameter r_s aufgetragen. Die extrahierte XC-Energiedichte (schwarz, gestrichelt) reflektiert dabei die Struktur des Dichteprofiles mit dem Minimum im Zentrum. Deshalb liegen für r_s -Werte, die Dichten zwischen dem zentralen Minimum und Maximum entsprechen, zwei extrahierte ε_{XC} -Werte vor. Diese Redundanz liefert ein Maß für die Quantifizierung der nicht-lokalen Effekte, die in der LDA unberücksichtigt geblieben sind. Im folgenden werden insbesondere die beiden ε_{XC} -Werte, die bei dem Minimum und dem Maximum des Dichteprofiles auftreten und durch A und B gekennzeichnet sind, eine besondere Rolle spielen.

Neben der Redundanz zwischen den Extrema innerhalb einer Kurve können wir natürlich auch Redundanz durch Variation der Stärke des externen Confinement-Potentials erzielen ($\hbar\omega_0 = 3\text{meV}$ bis 100meV). Das oben präsentierte Beispiel von

[‡]Zusätzlich wird natürlich das Integral numerisch auf einer endlichen Kreisscheibe berechnet.

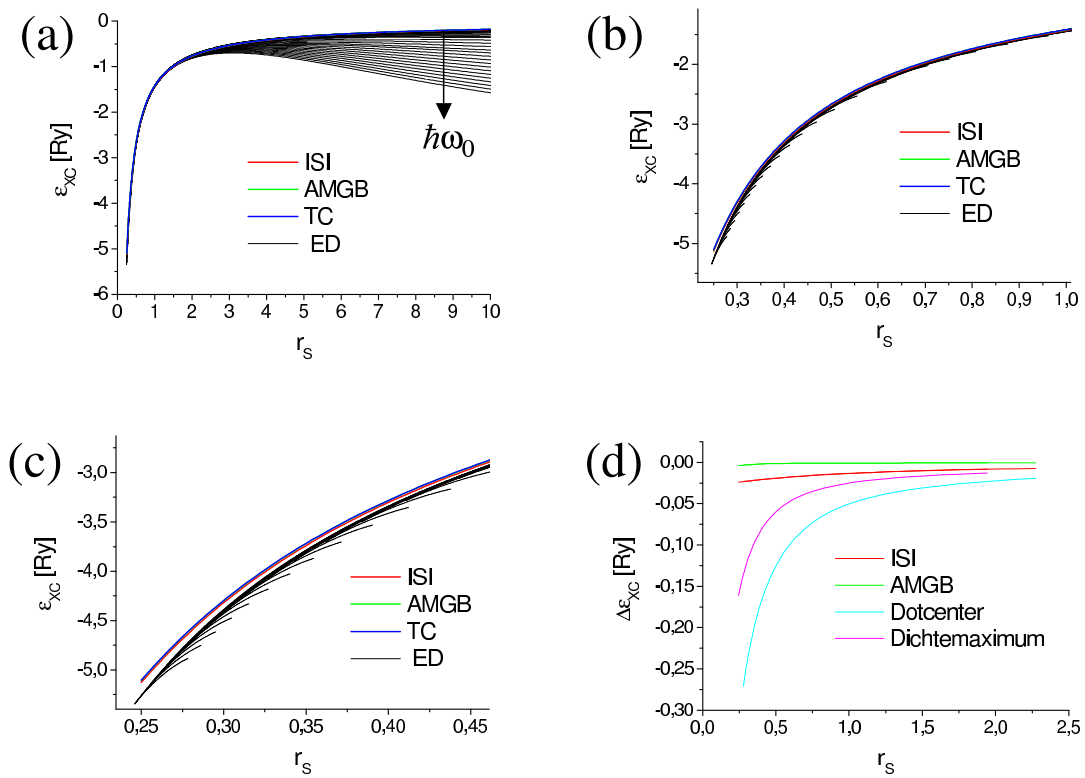


ABBILDUNG 6.3: Die Abbildung zeigt extrahierte XC-Energiedichten, die gegen den Dichteparameter aufgetragen sind, zusammen mit Referenzkurven (ISI, AMGB, TC). (a), (b), (c) geben einen Überblick über alle aus der ED gewonnenen ϵ_{XC} -Werte für verschiedene Dichteparameterintervalle. Dagegen beschränkt sich (d) auf ϵ_{XC} -Werte aus den Extrema, die als Differenz zur TC-Kurve aufgetragen sind.

3.32meV ist dabei in einem Regime angesiedelt, wo die Bedeutung der Coulomb-Wechselwirkung groß und Korrelationseffekte wichtig sind. Mit zunehmendem Confinement gewinnen die Einteilchen-Anteile im Hamiltonian an Gewicht. Deshalb ist bei großem $\hbar\omega_0$ die Genauigkeit des ED-Resultats besser. Die untere Grenze von 3meV ist so gewählt, daß die Ergebnisse der ED hinreichend präzise sind.

In Abbildung 6.3 sind die XC-Energiedichten für verschiedene Confinement-Energien[§] zusammengefaßt. (a) gibt dabei einen Überblick über extrahierte XC-Energiedichten im Vergleich zu den Parametrisierungen gemäß ISI, AMGB, TC. In diesem Kontext sind zwei Aspekte interessant: Zum einen stimmt die einhüllende Kurve aller extrahierten XC-Energien in diesem Maßstab relativ gut mit den anderen Parametrisierungen überein. Andererseits weichen die ε_{XC} -Werte insbesondere für große Confinement-Potentiale deutlich von den Referenzkurven ab. Dies ist eine Folge der abgeschnittenen Basis in der ED, die eine bessere Darstellung der Dichte am Rand des QDs verhindert. Je größer das Confinement ist, bei desto kleineren r_s -Werten setzt dieser Effekt ein. In (b) und (c) haben wir dieselbe Auftragung gewählt, legen aber den Fokus auf kleine Dichteparameter. Wie in (b) deutlich zu erkennen ist, vergrößert sich der Abstand zwischen den Referenzkurven und der einhüllenden Kurve der extrahierten XC-Energiedichten. Diese systematische Abweichung ist in (c) noch einmal im Detail abgebildet. Um eine übersichtlichere Darstellung zu erreichen, konzentriert sich (d) auf die extrahierten XC-Energiedichten bei den Extrema und stellt die Differenz der jeweiligen Kurven zur TC-Referenzkurve dar. Die Graphen entsprechen in den dargestellten Dichteparameterintervallen einer oberen, aus den Dichtemaxima gewonnenen und einer unteren, aus den Dichteminima im Dotzentrum berechneten Grenze für die aus der ED gewonnenen ε_{XC} -Werte. Die beiden Grenzkurven für die extrahierten XC-Energiedichten liegen deutlich unter denen von TC, AMGB und ISI, wobei sich der Abstand bei kleineren r_s -Werten weiter vergrößert. Damit setzen sie eine Tendenz der ISI-Parametrisierung fort, die in diesem Regime XC-Energiedichten liefert, die unter der TC- bzw. AMGB-Kurve liegen. Zuletzt bleibt noch der Abstand zwischen den Grenzkurven zu diskutieren. Die ε_{XC} -Werte aus den Extrema sind dadurch ausgezeichnet, daß bei ihnen aufgrund des verschwindenden Dichtegradients der Einfluß von Gradientenkorrekturen gering sein dürfte. Folglich müssen nicht-lokale Effekte höherer Ordnung für die Abweichungen verantwortlich sein.

6.1.2 Vollständig polarisierte Systeme

Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit vollständig polarisierten Systemen. Jedes KS-Niveau ist mit einem Spin-down-Elektron besetzt. Somit ist die N -Teilchen-KS-Wellenfunktion eine Eigenfunktion des Gesamtspinoperators, für die Teilchenzahl ergibt sich keine Einschränkung hinsichtlich ihrer Parität. Während der Inversion der KS-Gleichungen, d.h. der iterativen Berechnung der XC-Potentiale, besteht keine Möglichkeit, Informationen über das XC-Potential für die unbesetzte Spinrichtung zu gewinnen.¹⁸ Dieses Problem spielt aber bei der Extraktion der XC-Energiedichten in

[§] $\hbar\omega_0 = 3\text{meV}, 3.32\text{meV}, 3.5\text{meV}, 4\text{meV}, 4.5\text{meV}, 5\text{meV}, 5.5\text{meV}, 6\text{meV}, 6.5\text{meV}, 7\text{meV}, 7.5\text{meV}, 8\text{meV}, 8.5\text{meV}, 9\text{meV}, 10\text{meV}, 12\text{meV}, 14\text{meV}, 16\text{meV}, 18\text{meV}, 20\text{meV}, 25\text{meV}, 30\text{meV}, 35\text{meV}, 40\text{meV}, 45\text{meV}, 50\text{meV}, 55\text{meV}, 60\text{meV}, 65\text{meV}, 70\text{meV}, 75\text{meV}, 80\text{meV}, 85\text{meV}, 90\text{meV}, 95\text{meV}, 100\text{meV}$

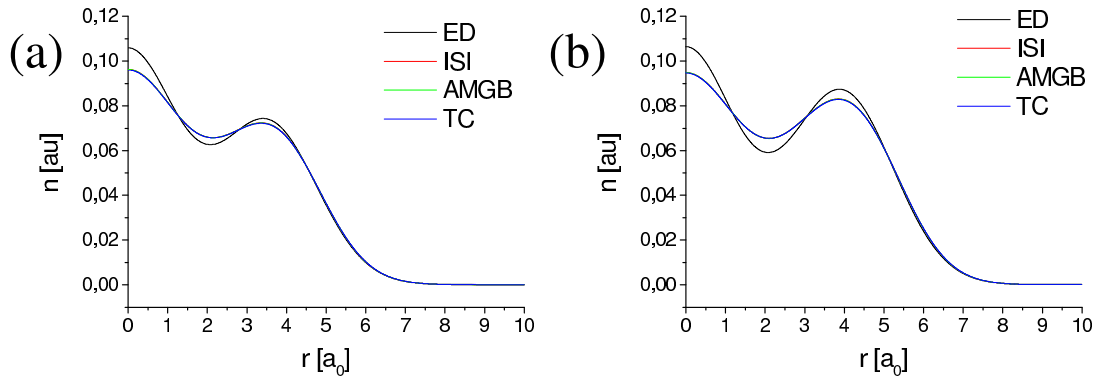


ABBILDUNG 6.4: (a) und (b) stellen die ED-GZ-Dichten für Systeme mit sechs und acht Elektronen den DFT-Ergebnissen mit verschiedenen Parametrisierungen (ISI, AMGB, TC) gegenüber.

N	$\hbar\omega_h$	ED	TC	AMGB	ISI
6	3meV	86.5177 meV	87.0216 meV	86.8146 meV	86.4520 meV
8	3meV	144.1706 meV	144.7258 meV	144.4365 meV	143.94578 meV
6	100meV	1690.1873 meV	1695.0288 meV	1694.2967 meV	1694.0850 meV
8	100meV	2712.4841 meV	2717.5142 meV	2716.5164 meV	2716.2468 meV

TABELLE VII: GZ-Energien für die Systeme $N = 6$, $S = -S_z = 3$, $L = 0$ und $N = 8$, $S = -S_z = 4$, $L = 0$ bei 3meV und 100meV Confinement-Potential. Die Energien wurden mit ED bzw. DFT unter Verwendung der Parametrisierungen TC, AMGB, ISI berechnet.

LDA keine Rolle, da in Gleichung (5.22) das XC-Potential der unbesetzten Spinrichtung jeweils mit der entsprechenden Spindichte oder deren Ableitung multipliziert wird und somit verschwindet.

Eine Sonderstellung als GZe nehmen Konfigurationen mit vollständiger Polarisierung und verschwindender Stromdichte ein. Gemäß den Spektren aus Kapitel 4 sollten sie nicht als GZe auftreten. Dennoch sind Situationen denkbar, wo solche Zustände zu GZen werden. So berichten Mikhailov & Savostianova (2002¹¹³) bzw. Mikhailov (2002¹¹¹) von Übergängen zu vollständig polarisierten GZen bei einer Abschwächung des externen Confinement-Potentials. Andererseits kann eine stark erhöhte Zeeman-Energie schon bei kleinen Magnetfeldern zu einem spin-polarisierten GZ führen. Wir wollen an dieser Stelle die Konfigurationen $N = 6$, $S = -S_z = 3$, $L = 0$ und $N = 8$, $S = -S_z = 4$, $L = 0$ betrachten, die für vollständig polarisierte Systeme als GZe auftreten.[¶]

In Abbildung 6.4 sind die GZ-Dichten für Systeme mit $N = 6$ und 8 Elektronen bei einem externen Potential der Stärke 3meV gegenübergestellt. Die Struktur der Dichten ist gekennzeichnet durch ein Maximum im Dotzentrum und ein Zwischenminimum und ein Zwischenmaximum mit wachsendem Radius. In den Extrema finden wir auch die größten (absoluten) Abweichungen der ED-GZ-Dichten von den DFT-

[¶]Für $N = 4, 5$ und 7 existieren keine vollständig polarisierten GZe mit $L = 0$.

GZ-Dichten. Die einzelnen Parametrisierungen (TC, AMGB, ISI) unterscheiden sich hingegen nur marginal in den Dichten. Hinsichtlich der GZ-Energien liefert wie schon zuvor ISI den niedrigsten Wert im Vergleich mit den anderen Parametrisierungen (vgl. Tabelle VII), der außerdem auch noch unter dem der ED liegt. Es kann nicht abschließend beurteilt werden, ob die ISI-GZ-Energie die beste Approximation darstellt, da die DFT-GZ-Energie keine obere Schranke für die exakte GZ-Energie ist (vgl. Kapitel 2.1). Allerdings sind die Unterschiede im Vergleich zur ED^{||} so gering, daß sie in deren Fehlerbereich liegen.** Wesentlicher sind die Abweichungen in den Dichten zwischen DFT und ED, die klar die Fehler in der ED überschreiten.

Abbildung 6.5 zeigt am Beispiel des Sechselektronen-Systems bei einem Confinement-Potential von 3meV die Inversion der KS-Gleichungen.^{††} Das extrahierte XC-Potential (gestrichelte Kurve in Abbildung 6.5(b)) reproduziert die Dichte aus der ED perfekt (vgl. Abbildung 6.5(a)). Im Vergleich zum TC-XC-Potential (graue, durchgezogene Kurve in (b)) sind das Potentialminimum und das Zwischenmaximum stärker ausgeprägt. Damit korrigiert es die Abweichungen zwischen ED und DFT in der GZ-Dichte, die wir in Abbildung 6.4(a) festgestellt haben. In (c) bzw. (d) sind die extrahierte XC-Energiedichte (schwarz, gestrichelt) und die TC-XC-Energiedichte (grau, durchgezogen) gegen den Radius r bzw. gegen den Dichteparameter r_s aufgetragen. Die Struktur von Dichte und Potential, die durch drei Extrema gekennzeichnet ist, spiegelt sich auch in der extrahierten XC-Energiedichte wider (vgl. (d) und (e)). Die Abweichungen der ε_{XC} -Werte beim selben r_s sind wie zuvor auf nicht-lokale Effekte zurückzuführen.

In Abbildung 6.6(a) bzw. (b) sind die Resultate für die extrahierten XC-Energiedichten bei verschiedenen Confinement-Potentialen^{‡‡} für sechs bzw. acht Elektronen zusammengefaßt. Wie im Fall der stromlosen, unpolarisierten Systeme sehen wir eine relativ gute Übereinstimmung der Einhüllenden mit den Referenzparametrisierungen TC, AMGB, ISI. Die Abweichungen der ε_{XC} -Werte bei großen Dichteparametern sind wiederum eine Folge der (nicht exakten) Darstellung der Dichte im Regime der exponentiell abfallenden Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Rand. In den Abbildungen (c) und (d) konzentrieren wir uns erneut auf XC-Energiedichten aus den Extrema der Dichte. Sowohl für sechs (c) als auch acht (d) Teilchen finden wir Abweichungen von den Referenzparametrisierungen TC, AMGB und ISI zu niedrigeren XC-Energiedichten. In Abbildung (e) sind die Ergebnisse für sechs und acht Elektronen zusammen dargestellt. Diese Form der Auftragung ist ein wichtiger Test, um die Konsistenz der extrahierten ε_{XC} -Werte zu prüfen. Obwohl sie für kleine r_s -Werte nur größenordnungsweise übereinstimmen, läßt sich aus (e) eine klare Tendenz zu niedrigeren XC-Energiedichten schlußfolgern. Diese würden auch insbesondere die für große Confinement-Potentiale charakteristische Überschätzung der GZ-Energie durch die DFT verhindern (vgl. Tabelle VII für 100meV).

^{||}Für die ED wurden 58739 ($N = 6$) bzw. 149996 ($N = 8$) Slater-Determinanten verwendet.

^{**}Bei größerem Confinement liefert die ED wieder die niedrigsten Energien (vgl. Tabelle VII).

^{††}Die Struktur der dargestellten Größen ist für acht Elektronen qualitativ gleich.

^{‡‡}3meV, 4meV, 5meV, 6meV, 7meV, 8meV, 9meV, 10meV, 20meV, 30meV, 40meV, 50meV, 60meV, 70meV, 80meV, 90meV, 100meV

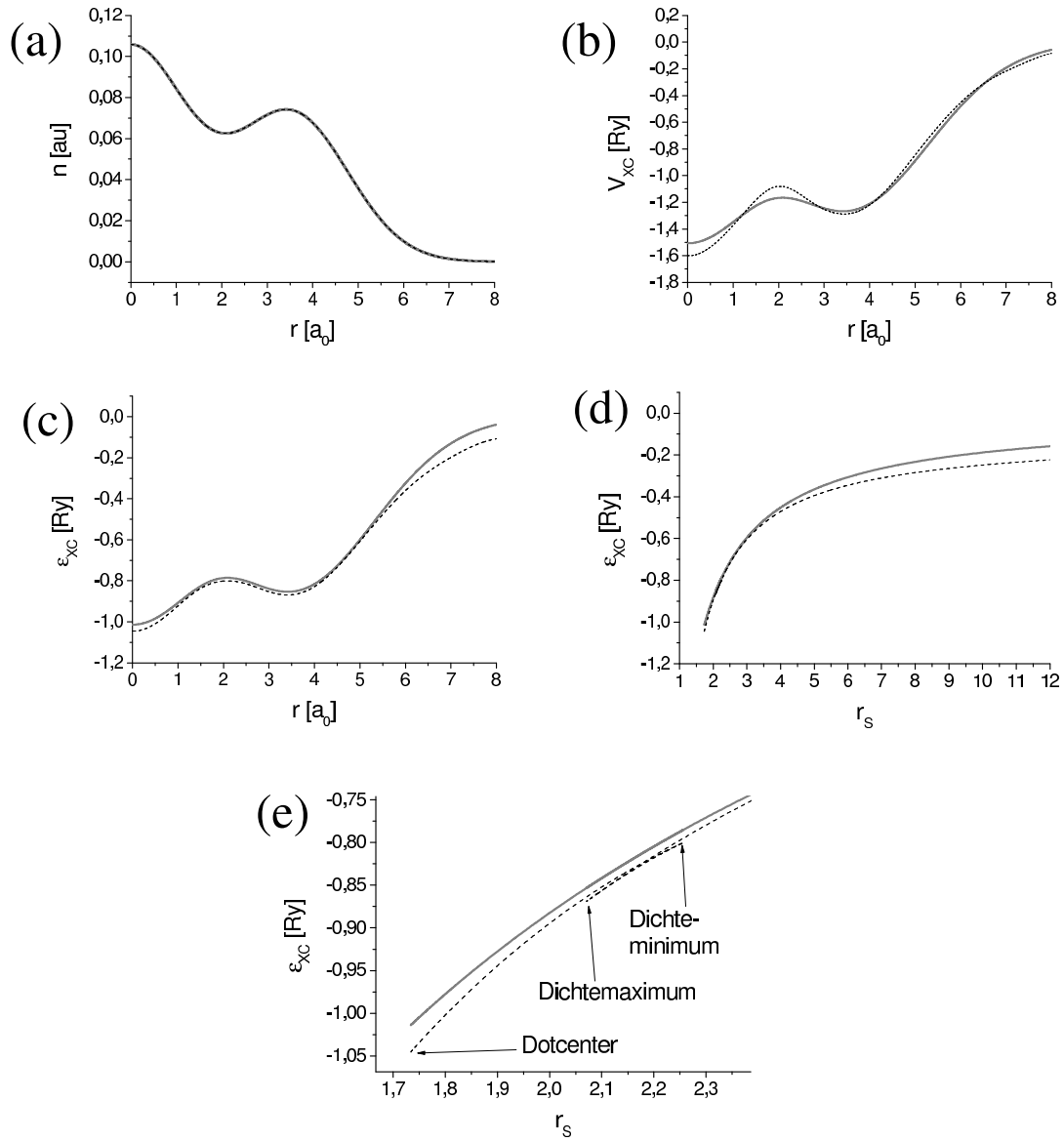


ABBILDUNG 6.5: Diese Abbildung zeigt die Inversion der KS-Gleichungen für ein System von sechs Elektronen mit einem Confinement-Potential von 3 meV. Das XC-Potential (schwarze, gestrichelte Linie) in (b) reproduziert das Dichteprofil der ED (graue, durchgezogene Linie in (a)). In (b) ist zum Vergleich das TC-XC-Potential in einer grauen, durchgezogenen Linie dargestellt. (c) zeigt die TC-XC-Energiedichte (grau, durchgezogen) versus extrahierter XC-Energiedichte (schwarz, gestrichelt). In (d) sind dieselben Größen wie in (c) zu sehen, aber entsprechend gegen den Dichteparameter r_s aufgetragen. (e) zeigt die redundante Struktur der extrahierten XC-Energiedichte zwischen den Dichtextrema. Für acht Elektronen verhalten sich die entsprechenden Größen qualitativ gleich.

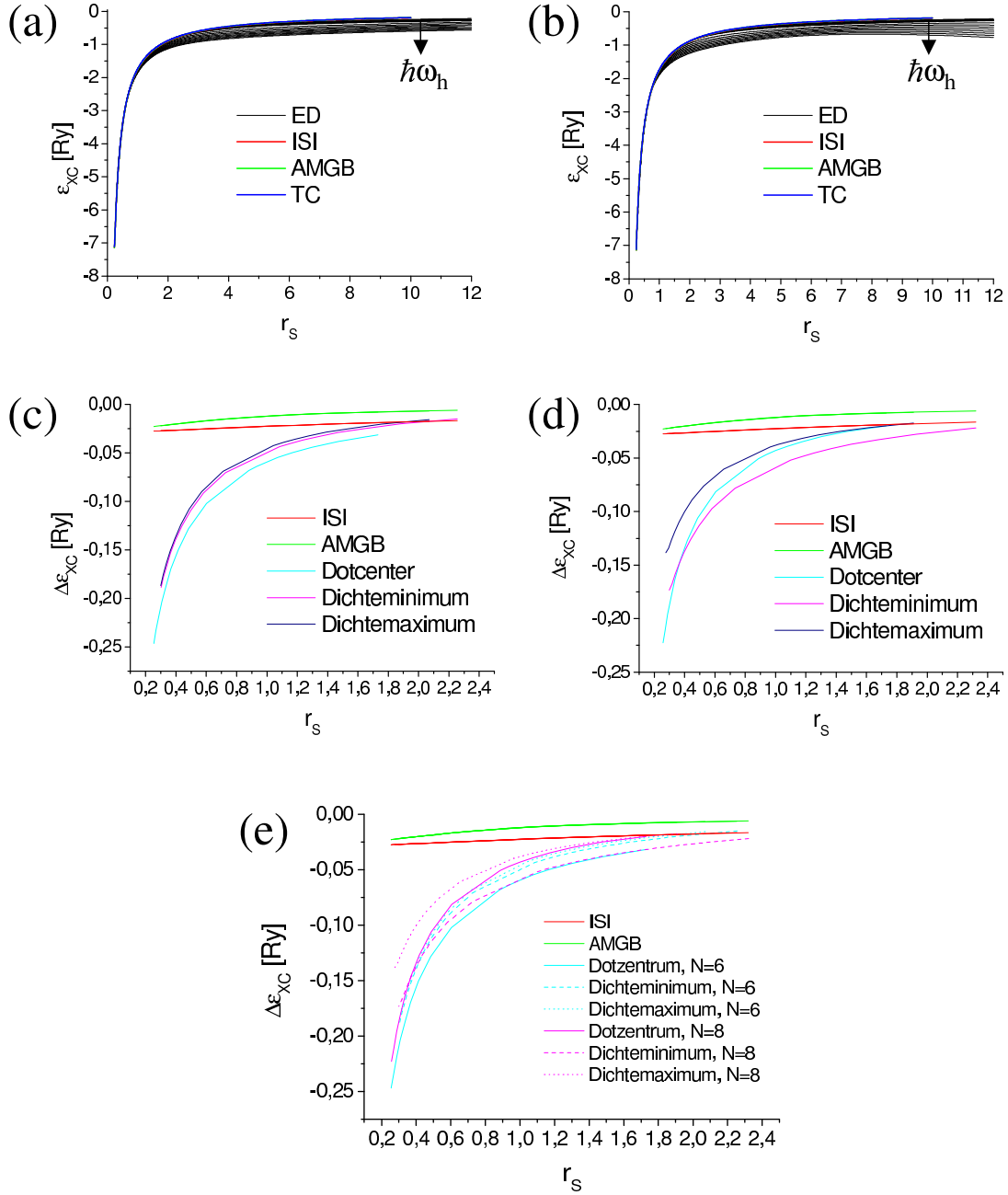


ABBILDUNG 6.6: Die Abbildung zeigt extrahierte XC-Energiedichten für sechs ((a) und (c)) und acht Elektronen ((b) und (d)), die gegen den Dichteparameter aufgetragen sind, zusammen mit Referenzkurven (ISI, AMGB, TC). In (c), (d) und (e) sind jeweils die Differenzen zur TC-Parametrisierung dargestellt. Die Ergebnisse für sechs bzw. acht Teilchen der Teilabbildungen (c) bzw. (d) sind in (e) zusammengefaßt.

6.1.3 Teilweise polarisierte Systeme

Nach der Behandlung von unpolarisierten und vollständig polarisierten Elektronendroplets schließen wir die Untersuchung von Systemen ohne paramagnetische Stromdichte mit den teilweise polarisierten Systemen ab. Diese spielen aufgrund von zwei Aspekten eine Sonderrolle: Zum einen ist die KS-Slater-Determinante keine Eigenfunktion des Gesamtspinoperators, was schon in Kapitel 2 diskutiert wurde. Andererseits tritt bei der Extraktion der XC-Energiedichte ein Problem auf, da für die spinabhängigen skalaren Potentiale zwei Eichkonstanten zu bestimmen sind.

Als teilweise polarisierte GZe ohne paramagnetische Stromdichte stehen die Systeme $N = 4$, $S = 1$, $L = 0$ (GZ gemäß Hundscher Regel) und $N = 6$, $S = 2$, $L = 0$ zur Verfügung. In der ED wurden für die Berechnung 294008 bzw. 192773 Slater-Determinanten verwendet. Ein weiterer Kandidat wäre der Zustand $N = 8$, $S = 1$, $L = 0$ (ebenfalls Hundsche Regel); aufgrund des hohen Rechenbedarfs für verschiedene Potentialstärken mußte aber von dessen Berücksichtigung abgesehen werden.

Die Abbildung 6.7 zeigt die GZ-Spindichten, die XC-Potentiale und die XC-Energiedichten für vier ((a) bis (d)) und sechs Elektronen ((e) bis (h)) bei 3meV. Bemerkenswert ist die Diskrepanz der Spindichten in der Umgebung der Extrema. Im Vergleich zur ED (grau, durchgezogen) unterschätzen die DFT-Resultate für alle Parametrisierungen die Spin-down-Dichten in den Maxima und überschätzen sie in den Minima. Dagegen sind bei den Spin-up-Dichten die Abweichungen der DFT von der ED und auch der Parametrisierungen untereinander nicht systematisch. Für vier Elektronen liegen die Spin-up-Dichten im Zentrum über denen der ED, wobei ISI die schlechteste Approximation ist. Im Gegensatz dazu sind für sechs Elektronen die DFT-Spin-up-Dichten zu niedrig und ISI reproduziert beinahe das Resultat der ED. Was die GZ-Energien betrifft, so bestätigt sich die Tendenz der vorangegangenen Abschnitte, nach der die ISI-Parametrisierung die geringsten Abweichungen von der ED-GZ-Dichte aufweist: Wir finden für vier Elektronen 40.7283meV (ED), 41.0542meV (TC), 40.9822meV (AMGB), 40.7843meV (ISI) und für sechs Elektronen 85.1501meV (ED), 85.5049meV (TC), 85.3316meV (AMGB), 84.9406meV (ISI).

In den Teilabbildungen (c) und (g) sind die XC-Potentiale für vier und sechs Elektronen dargestellt (schwarz, gestrichelt), die die KS-Dichten (ebenfalls schwarz und gestrichelt in (a), (b), (e), (f)) liefern. Diese stimmen auch mit den entsprechenden ED-Dichten überein. Zum Vergleich sind auch die XC-Potentiale abgebildet (grau, durchgezogen), die aus der TC-Parametrisierung folgen. Um die zweite Konstante zur Extraktion der XC-Energiedichte zu bestimmen (vgl. Kapitel 5), wurde während der iterativen Inversion der KS-Gleichungen die gleiche Asymptotik für die $V_{XC,\sigma}$ beider Spinrichtungen vorausgesetzt. Damit sind die Potentiale für die beiden Spinrichtungen relativ zueinander korrekt geeicht. Als Ergebnis für die XC-Energiedichten (schwarze, gestrichelte Linien in (d) und (h)) erhalten wir Kurven, die unterhalb der TC-Referenzenergiedichten (grau, durchgezogen) liegen. Die bedeutendsten Abweichungen treten insbesondere an den Stellen der Dichteextrema auf, wo auch die größten Differenzen in den Spindichten zu finden sind.

Da sowohl XC-Energiedichten als auch Dichteparameter und Polarisation als Funktion des Radius vorliegen, ist es möglich, den Radius zu eliminieren und ε_{XC} als Funktion von r_s und ξ auszudrücken. Diese Art der Auftragung wurde in Abbildung 6.8

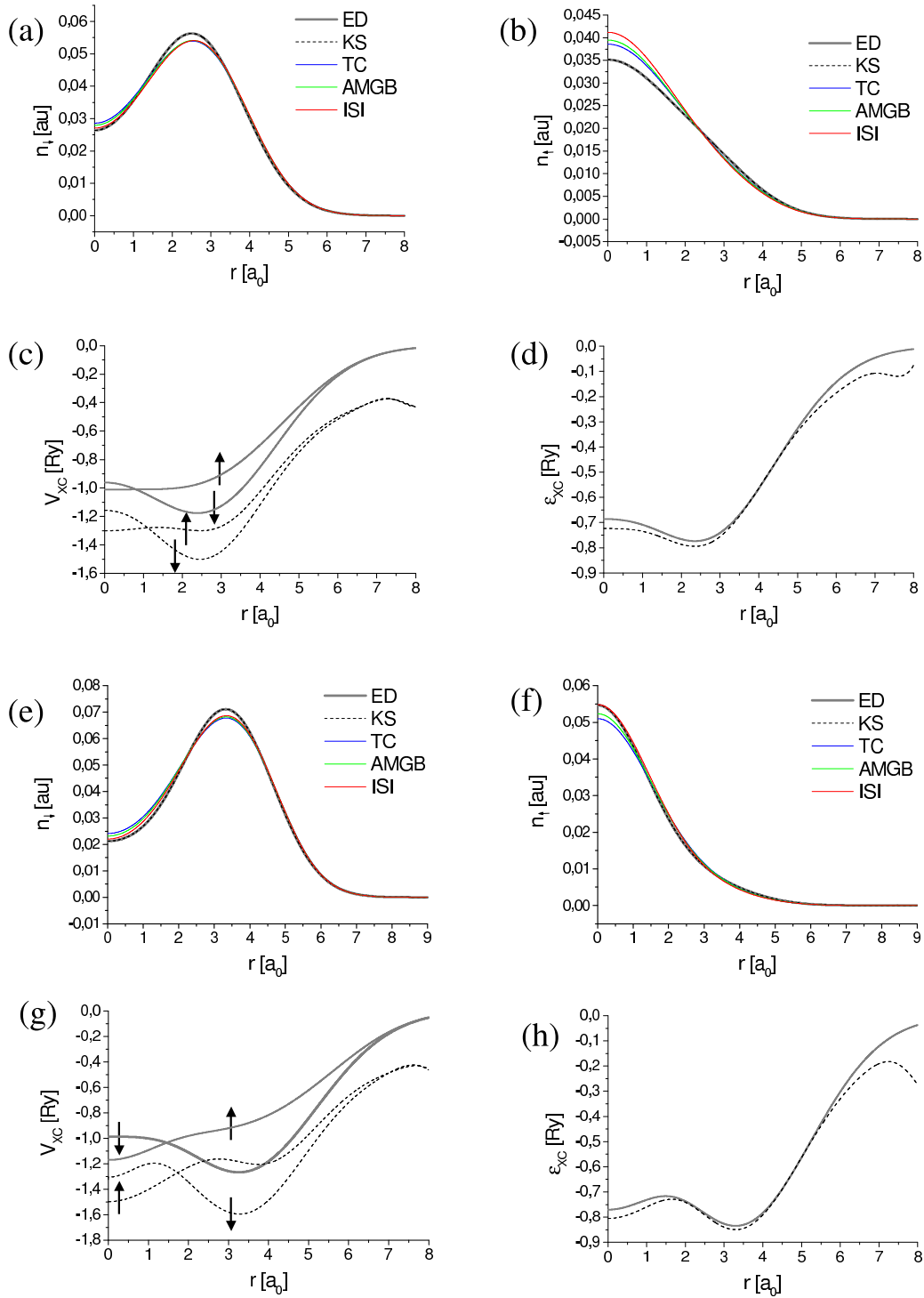


ABBILDUNG 6.7: In (a)-(d) bzw. (e)-(h) sind die Ergebnisse für vier bzw. sechs Elektronen bei einem Confinement-Potential von 3meV zusammengefaßt. (a) und (b) zeigen die Spin-down- und Spin-up-Dichten für vier Teilchen. Dargestellt ist die Dichte aus der ED im Vergleich zu DFT-Rechnungen mit TC-, AMGB- und ISI-Parametrisierung. In (c) sind die XC-Potentiale (schwarz, gestrichelt) aufgetragen, deren Dichte (KS-Kurve in (a), (b)) die ED-Dichte liefert. Die Referenz-XC-Potentiale in (c) (grau, durchgezogen) wurden mit Hilfe von TC berechnet, die Pfeile bezeichnen die Spinrichtungen der XC-Potentiale. In (d) ist die extrahierte XC-Energiedichte (schwarz, gestrichelt) im Vergleich zur TC-XC-Energiedichte (grau, durchgezogen) aufgetragen. Dito für sechs Elektronen.

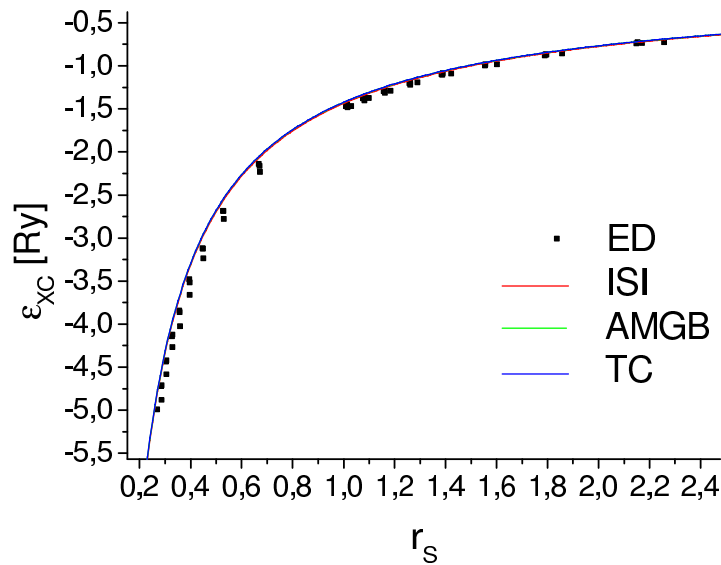


ABBILDUNG 6.8: Extrahierte XC-Energiedichten für die Polarisation $\xi = 0.1$ im Vergleich mit TC-, AMGB- und ISI-Parametrisierungen.

gewählt. Dort sind die Ergebnisse für vier und sechs Elektronen sowie verschiedene Stärken des Confinement-Potentials* zusammengefaßt. Die extrahierten Werte für die Polarisation $\xi = 0.1$ liegen jeweils unterhalb der TC-, AMGB-, ISI-Referenzkurven.[†] Diese leichten Korrekturen gegenüber den anderen Parametrisierungen werden deutlicher in Abbildung 6.9, wo jeweils die Differenzen zur TC-Referenzkurve dargestellt sind. Wie sich schon für unpolarisierte und vollständig polarisierte Systeme abzeichnete, weichen die extrahierten XC-Energiedichten im Regime kleiner Dichteparameter r_s für alle Polarisationen systematisch ab. Insbesondere ist zu berücksichtigen, daß in den Abbildungen 6.8 und 6.9 die Ergebnisse für vier und sechs Elektronen sowie verschiedene Potentialstärken zusammengefaßt sind, was wiederum eine Redundanz zur Folge hat. Dabei liegt die Streuung der extrahierten Werte in der gleichen Größenordnung wie z.B. für vollständig polarisierte Systeme in Abbildung 6.6.

6.2 Systeme mit paramagnetischer Stromdichte

Beim Auftreten einer paramagnetischen Stromdichte im QD muß zusätzlich zu r_s und ξ auch die Abhängigkeit der XC-Energiedichte von der Vortizität v berücksichtigt werden. In den folgenden Abschnitten konzentrieren wir uns auf unpolarisierte bzw. vollständig polarisierte Systeme mit konstantem ξ . Teilweise polarisierte Systeme mit endlichem Drehimpuls werden nicht behandelt, da schon die Untersuchung für $\xi = 0$

*3meV, 4meV, 5meV, 6meV, 7meV, 8meV, 9meV, 10meV, 20meV, 30meV, 40meV, 50meV, 60meV, 70meV, 80meV, 90meV, 100meV

[†]Es wurden nur ε_{XC} -Werte aus dem Dotzentrum berücksichtigt.

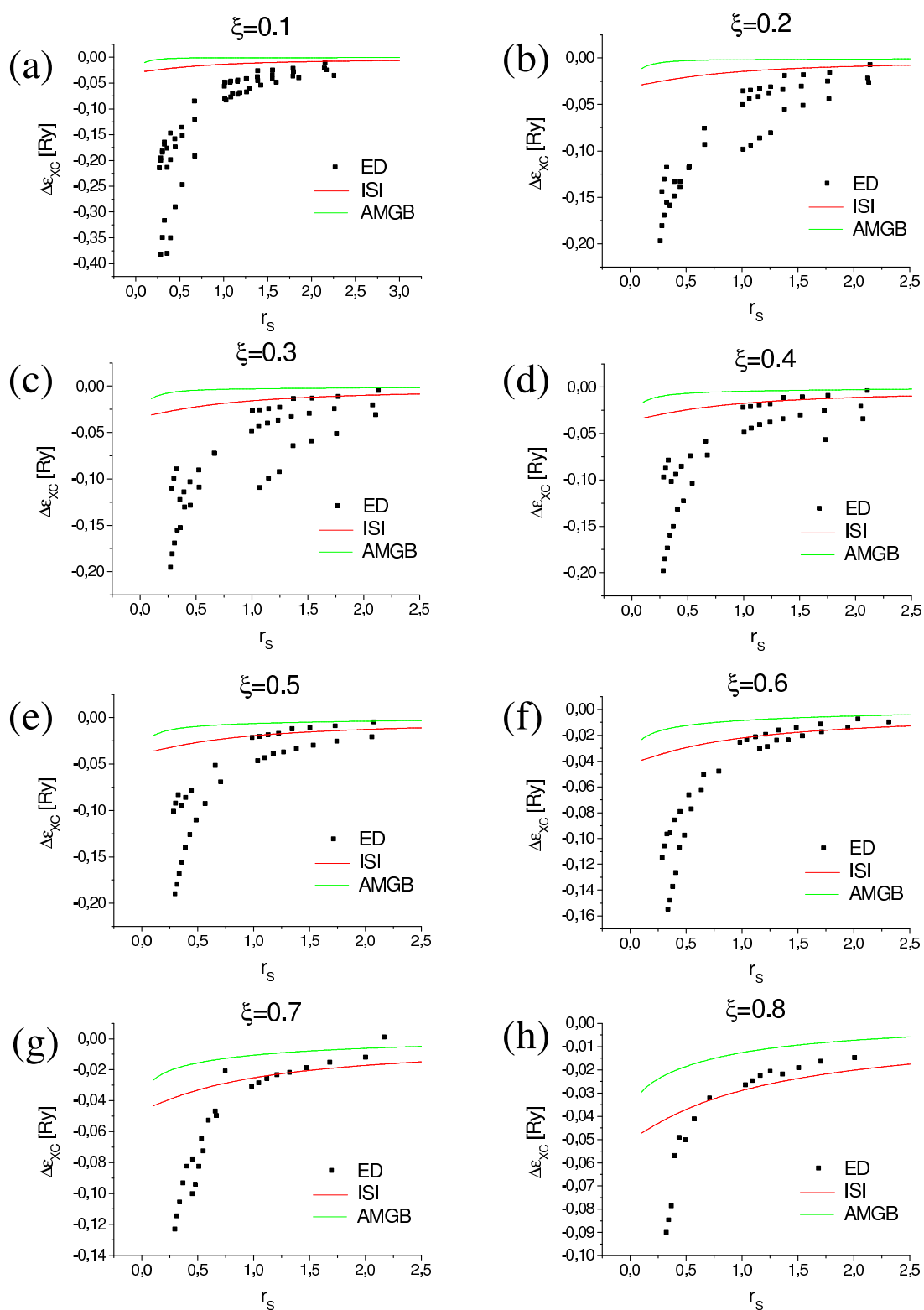


ABBILDUNG 6.9: Abweichungen der extrahierten XC-Energiedichten und der AMGB- und ISI-Parametrisierungen von der TC-Kurve für verschiedene Polarisationen ξ .

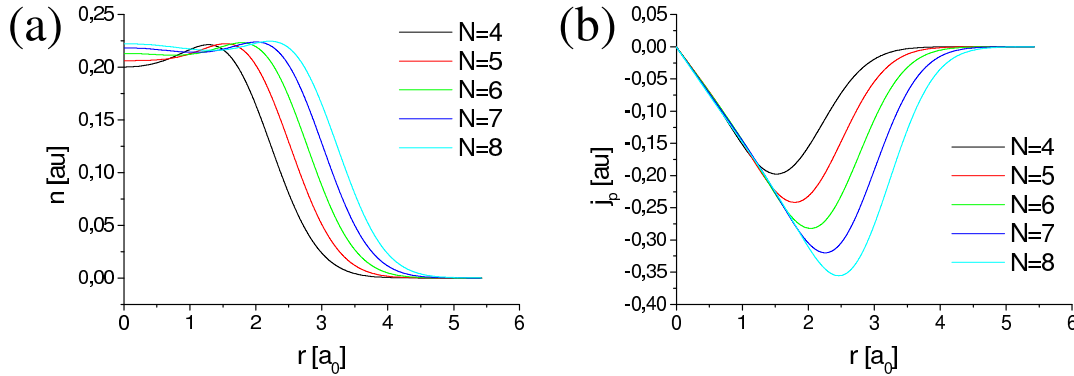


ABBILDUNG 6.10: GZ-Dichten (a) und paramagnetische Stromdichten (b) für $\nu = 1$ -Droplets mit 4, 5, 6, 7 und 8 Elektronen.

und $\xi = \pm 1$ zu Komplikationen bei der iterativen Berechnung des XC-Vektorpotentials führt.[‡]

6.2.1 Vollständig polarisierte Systeme: $\nu = 1$ -Droplets

Das $\nu = 1$ -Droplet ist eine äußerst stabile Konfiguration im GZ-Phasendiagramm eines QDs im Magnetfeld (vgl. Referenz⁷⁰ oder Abbildung 4.5). Im Einteilchen-Bild besetzen Elektronen mit parallelen Spins die energetisch niedrigsten Zustände des LLLs mit Einteilchen-Drehimpulsen von 0 bis $N - 1$ (Abbildung 3.1(a)). Die entsprechende Slater-Determinante bleibt auch die Konfiguration mit dem größten Gewicht in der Linearkombination der Vielteilchen-Wellenfunktion. Aufgrund des nicht verschwindenden Gesamtdrehimpulses liegt eine endliche Stromdichte vor. Abbildung 6.10(a) und (b) zeigen die GZ-Dichten und die paramagnetischen Stromdichten, wie sie für ein Confinement-Potential von 3meV aus der ED folgen. In der ED wurden 46362 (79958, 81918, 109818, 96287) Slater-Determinanten für 4 (5, 6, 7, 8) Elektronen verwendet.

Nun können wir mit Hilfe des Iterationsverfahrens aus Kapitel 5 das skalare XC-Potential und das XC-Vektorpotential berechnen. In Abbildung 6.11 sind die Ergebnisse für das Sechselektronen-System bei 3meV Confinement-Potential gezeigt.[§] Verschiedene Rechnungen liefern Tupel von XC-Potentialen, die die vorgegebenen Dichten mit vergleichbarer Genauigkeit reproduzieren. Sowohl die skalaren XC-Potentiale als auch die XC-Vektorpotentiale unterscheiden sich zum Teil dramatisch.[¶] Aber andererseits ist A_{XC} notwendig, um eine Übereinstimmung für j_p zu erzielen. Wird das Iterationsverfahren unter der Randbedingung $A_{XC} = 0$ durchgeführt, so finden wir zwar wenig Abweichungen in der Dichte (siehe (e)), aber relative Fehler bis zu 0.02 für die paramagnetische Stromdichte (siehe (f)).

[‡]Um die Notation zu vereinfachen, schreiben wir ab jetzt $A_{XC}(r) := A_{XC,\varphi}(r)$ und $j_p(r) := j_{p,\varphi}(r)$.

[§]Ähnliche Ergebnisse lassen sich auch für andere Teilchenzahlen und Confinement-Potentiale erzielen.

[¶]Die verschiedenen Resultate wurden durch Variation der Iterationsparameter und der Initialisierung von A_{XC} am Anfang der Iteration erzeugt.

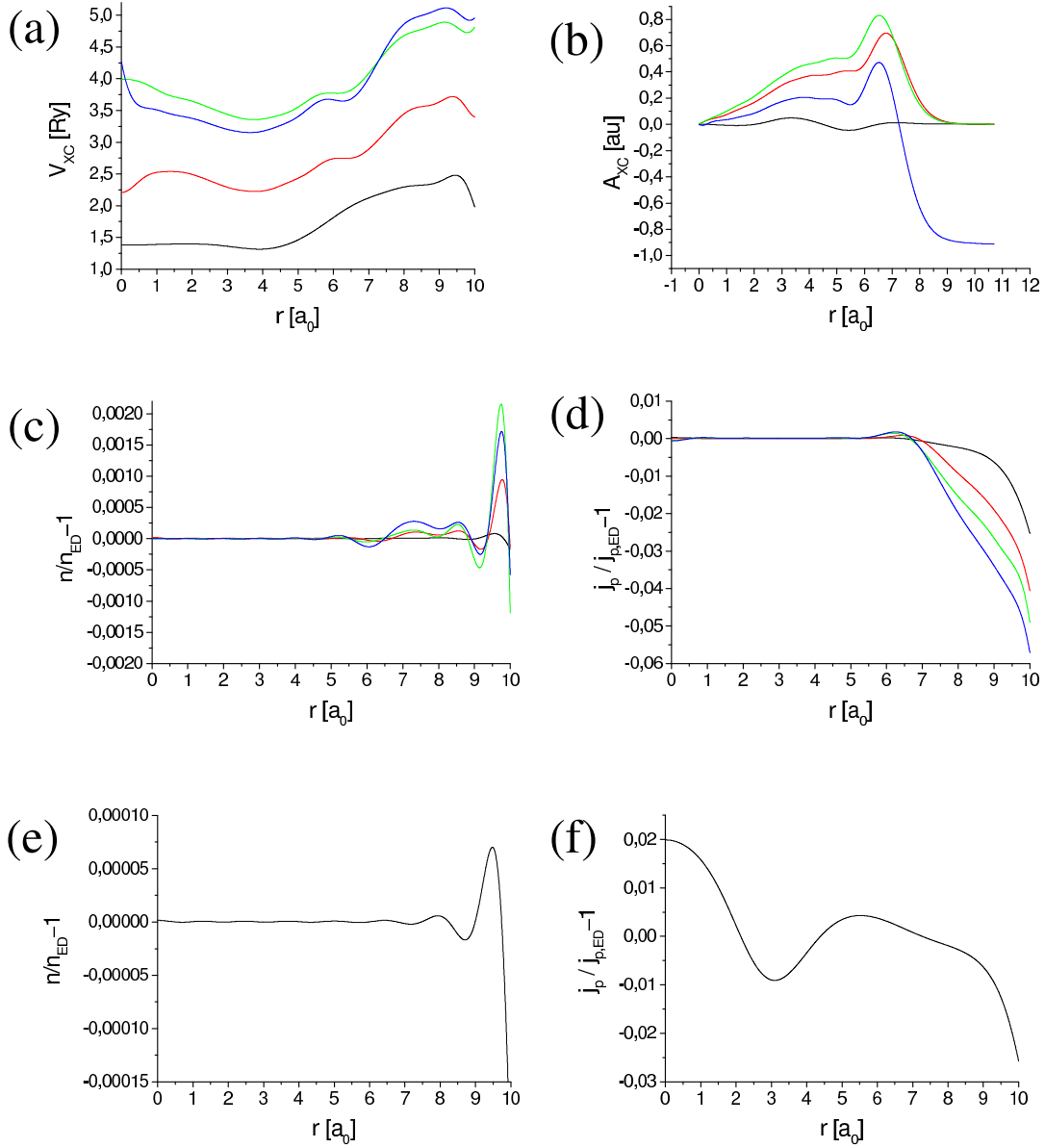


ABBILDUNG 6.11: Die Abbildung zeigt Rechnungen für das Sechselektronen- $\nu = 1$ -Droplet, die mit verschiedenen Werten für die XC-Potentiale initialisiert wurden. In (a) und (b) sind die (ungeeichten) skalaren XC-Potentiale und die XC-Vektorpotentiale dargestellt, die die ED-Referenzdichten mit ähnlichen Fehlern (c), (d) reproduzieren. (Gleiche Farben kennzeichnen die Größen einer Rechnung.) (e) und (f) zeigen die relativen Fehler in Dichte und paramagnetischer Stromdichte, falls auf das XC-Vektorpotential verzichtet wird.

Die numerischen Ergebnisse sind ein offensichtlicher Widerspruch zur analytisch gezeigten Eindeutigkeit der Potentiale im KS-Hamiltonian eines QDs (vgl. Kapitel 5 und Anhang D). Damit stellt sich die Frage, worauf diese Problematik zurückzuführen ist. Zur Klärung des Sachverhalts betrachten wir das $\nu = 1$ -Droplet für zwei Elektronen und Confinement-Potential $2/3Ry$, für das alle Dichten, KS-Wellenfunktionen und XC-(Vektor)-Potentiale analytisch bekannt sind (siehe Abschnitt 5.4.2), d.h. die Repräsentabilität und die Eindeutigkeit sind hier gewährleistet. Der Spezialfall erlaubt einige wichtige Tests des Programms zur iterativen Berechnung der XC-Potentiale. Im ersten Test wurden die XC-Potentiale im Programm mit den exakten Werten initialisiert und die Dichten berechnet. Eine relative Genauigkeit der GZ-Dichten von 10^{-8} demonstriert die Selbstkonsistenz der numerischen Implementierung. In einem zweiten Schritt versuchten wir, das analytische Ergebnis mit Hilfe des Iterationsverfahrens zu wiederholen. Wie im Fall des $\nu = 1$ -Droplets mit sechs Elektronen lassen sich jedoch je nach Iterationsparameter und Initialisierung verschiedene Formen für die XC-Potentiale (insbesondere für das XC-Vektorpotential) erzeugen (Abbildung 6.12). Dies zeigt, daß die Ursache der (numerischen) Nicht-Eindeutigkeit nicht auf mangelnde Genauigkeit der ED-GZ-Dichten zurückzuführen ist. Wie schon beim $\nu = 1$ -Droplet mit sechs Elektronen ist es unmöglich, ohne A_{XC} eine Übereinstimmung für j_P zu erzielen (vgl. (e) und (f)).

Der eigentliche Grund scheint in der lokalen Berechnung des XC-Vektorpotentials während der Iteration zu liegen. Wird A_{XC} mit Null initialisiert, so ist die Vorzeichenverteilung von A_{XC} als Funktion des Radius typischerweise durch die Vorzeichenverteilung der Abweichung der paramagnetischen Stromdichte von der Referenzstromdichte am Anfang der Iteration bestimmt. Dagegen ist das exakte XC-Vektorpotential immer negativ, was sich numerisch nur durch eine entsprechende Initialisierung des XC-Vektorpotentials am Iterationsanfang sicherstellen läßt (z.B. blaue Kurve in Abbildung 6.12(b)). Generell scheint die Konvergenz gegen die korrekte Kurve unabhängig von den Anfangsbedingungen mit einem lokalen Schema zur Anpassung der Stromdichte nur schwer realisierbar zu sein. Ähnliche Probleme tauchen auch bei Verwendung von anderen aus der Stromdichte abgeleiteten Größen (z.B. der Vortizität) statt der paramagnetischen Stromdichte in Gleichung (5.12) auf.

Folglich ist das $\nu = 1$ -Droplet mit zwei Elektronen das einzige vollständig polarisierte System, das eine sinnvolle, d.h. analytische Berechnung der XC-Potentiale erlaubt. Aufgrund des hohen Anteils der Selbstwechselwirkung für zwei Teilchen eignet es sich zwar nicht zur Extraktion von XC-Energiedichten, aber wir können uns zumindest einen Überblick über die Abhängigkeit der XC-Potentiale von der Stärke des Confinement-Potentials^{||} verschaffen.

In Abbildung 6.13(a) und (b) sind die (ungeeichten) skalaren XC-Potentiale sowie in (c) und (d) die XC-Vektorpotentiale für verschiedene $\hbar\omega_h$ dargestellt. Die Berechnung erfolgte analytisch wie in Abschnitt 5.4.2 auf Grundlage von ED-Dichten und Stromdichten, wobei der asymptotisch lineare Anteil** durch Anfügen einer

^{||}3meV, 4meV, 5meV, 6meV, 7meV, 8meV, 9meV, 10meV, 20meV, 30meV, 40meV, 50meV, 60meV, 70meV, 80meV, 90meV, 100meV

**Der asymptotisch lineare Anteil entspricht einem homogenen Magnetfeld in z-Richtung (vgl. Abschnitt 5.4.2).

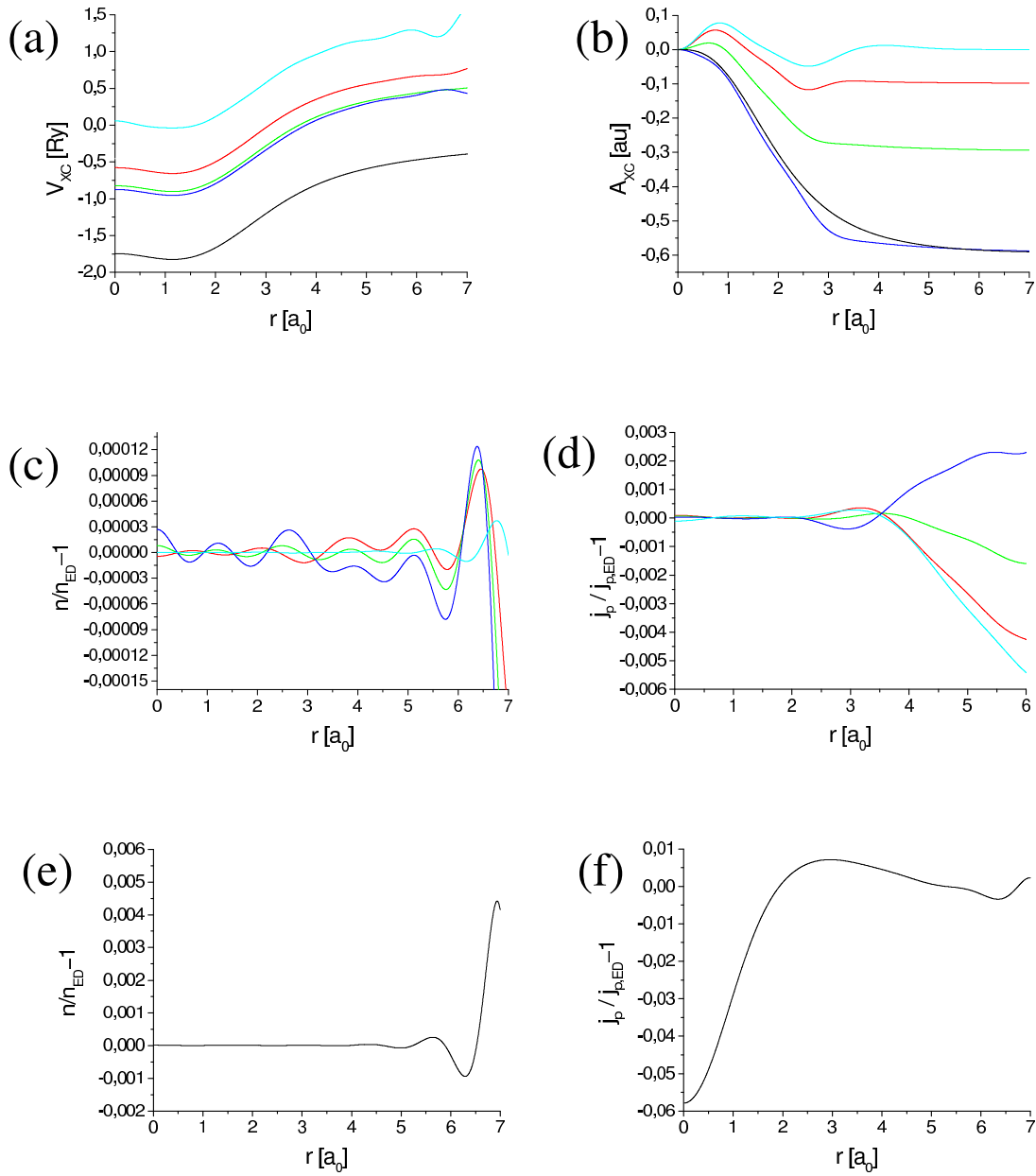


ABBILDUNG 6.12: Die Abbildung zeigt Rechnungen für das Zweielektronen- $\nu = 1$ -Droplet, die mit verschiedenen Werten für die XC-Potentiale initialisiert wurden. In (a) und (b) sind die (ungeeichten) skalaren XC-Potentiale und die XC-Vektorpotentiale dargestellt, die die ED-Referenzdichten mit ähnlichen Fehlern (c), (d) reproduzieren. (Gleiche Farben kennzeichnen die Größen einer Rechnung.) Die schwarzen Kurven in (a) und (b) sind die analytisch berechneten XC-Potentiale. (e) und (f) zeigen die relativen Fehler in Dichte und paramagnetischer Stromdichte, falls auf das XC-Vektorpotential verzichtet wird.

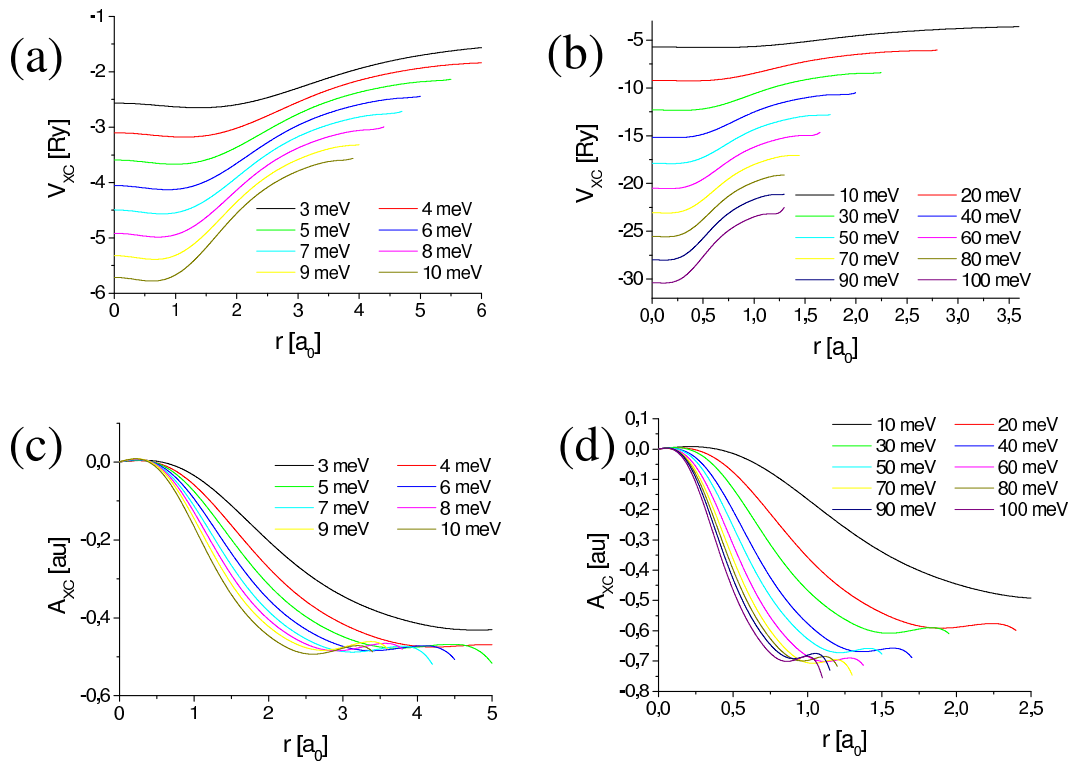


ABBILDUNG 6.13: (Ungeechte) skalare XC-Potentiale (a), (b) und XC-Vektorpotentiale (c), (d) des $\nu = 1$ -Droplets mit zwei Elektronen für verschiedene Potentialstärken.

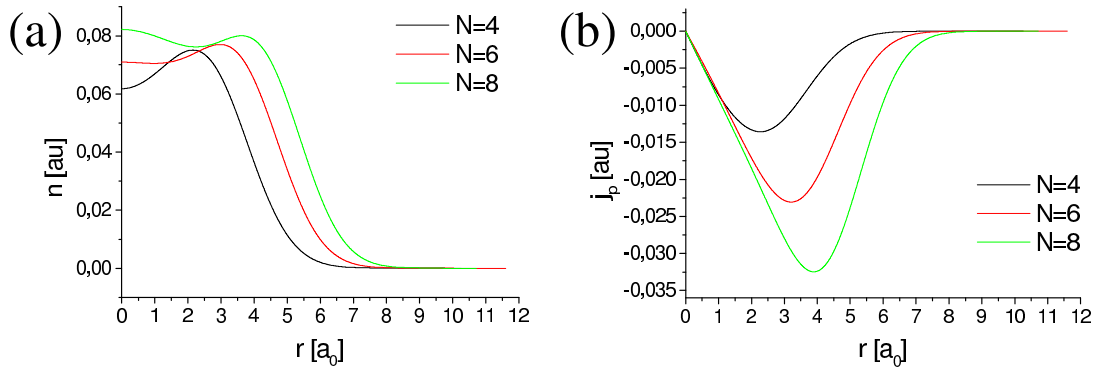


ABBILDUNG 6.14: GZ-Dichten (a) und paramagnetische Stromdichten (b) für $\nu = 2$ -Droplets mit 4, 6 und 8 Elektronen.

Geraden ermittelt und subtrahiert wurde. Das Profil der A_{XC} ist nur im Dotzentrum verlässlich, wo die ED eine ausreichende Genauigkeit der Dichten garantiert. Die Asymptotik für große Radien kann mit ED-Dichten nicht reproduziert werden, da das XC-Vektorpotential als Differenz berechnet werden muß (siehe Gleichung (5.68)).^{††} Der interessante Aspekt in (c) und (d) ist die Tatsache, daß die Amplitude von A_{XC} viel geringer von der Stärke des externen Potentials abhängt als die Tiefe des XC-Potentials, d.h. mit wachsendem $\hbar\omega_h$ werden die stromabhängigen Korrekturen im Vergleich zu den dichteabhängigen Effekten schneller unwichtig.

6.2.2 Unpolarisierte Systeme: $\nu = 2$ -Droplets

Wie schon in Kapitel 3 dargestellt, ist das unpolarisierte $\nu = 2$ -Droplet eine wichtige Phase im GZ-Diagramm von QDs. Aufgrund des endlichen Drehimpulses $L = -(N/2 - 1)N/2$ eines N -Elektronen-Systems ($N \geq 4$) liegt eine nicht verschwindende Stromdichte vor. In diesem Abschnitt betrachten wir die $\nu = 2$ -Droplets mit 4, 6 und 8 Elektronen. Abbildung 6.14(a) und (b) zeigen die GZ-Dichten und die paramagnetischen Stromdichten, wie sie für ein Confinement-Potential von 3meV aus der ED folgen. In der ED wurden 335259 (560338, 911789) Slater-Determinanten für 4 (6, 8) Elektronen verwendet.

Bei der iterativen Berechnung der XC-Vektorpotentiale der $\nu = 2$ -Droplets treten bei allen untersuchten Teilchenzahlen dieselben Schwierigkeiten wie im Fall der vollständig polarisierten $\nu = 1$ -Droplets auf. Exemplarisch sind die Ergebnisse verschiedener numerischer Rechnungen für V_{XC} , A_{XC} und die relativen Fehler eines Vierelektronen-Systems in Abbildung 6.15 dargestellt ($\hbar\omega_h = 5\text{meV}$). Während sich das skalare XC-Potential fast nicht ändert, sind die Unterschiede in A_{XC} deutlich ausgeprägt. Dagegen kann ohne XC-Vektorpotential auch hier keine Übereinstimmung für j_p erzielt werden (siehe (f)). Die relativen Fehler sind sogar größer als bei $\nu = 1$ -Droplets.

^{††}Dies ist numerisch problematisch, da die beiden kinetischen Energiedichten annähernd gleich groß sind.

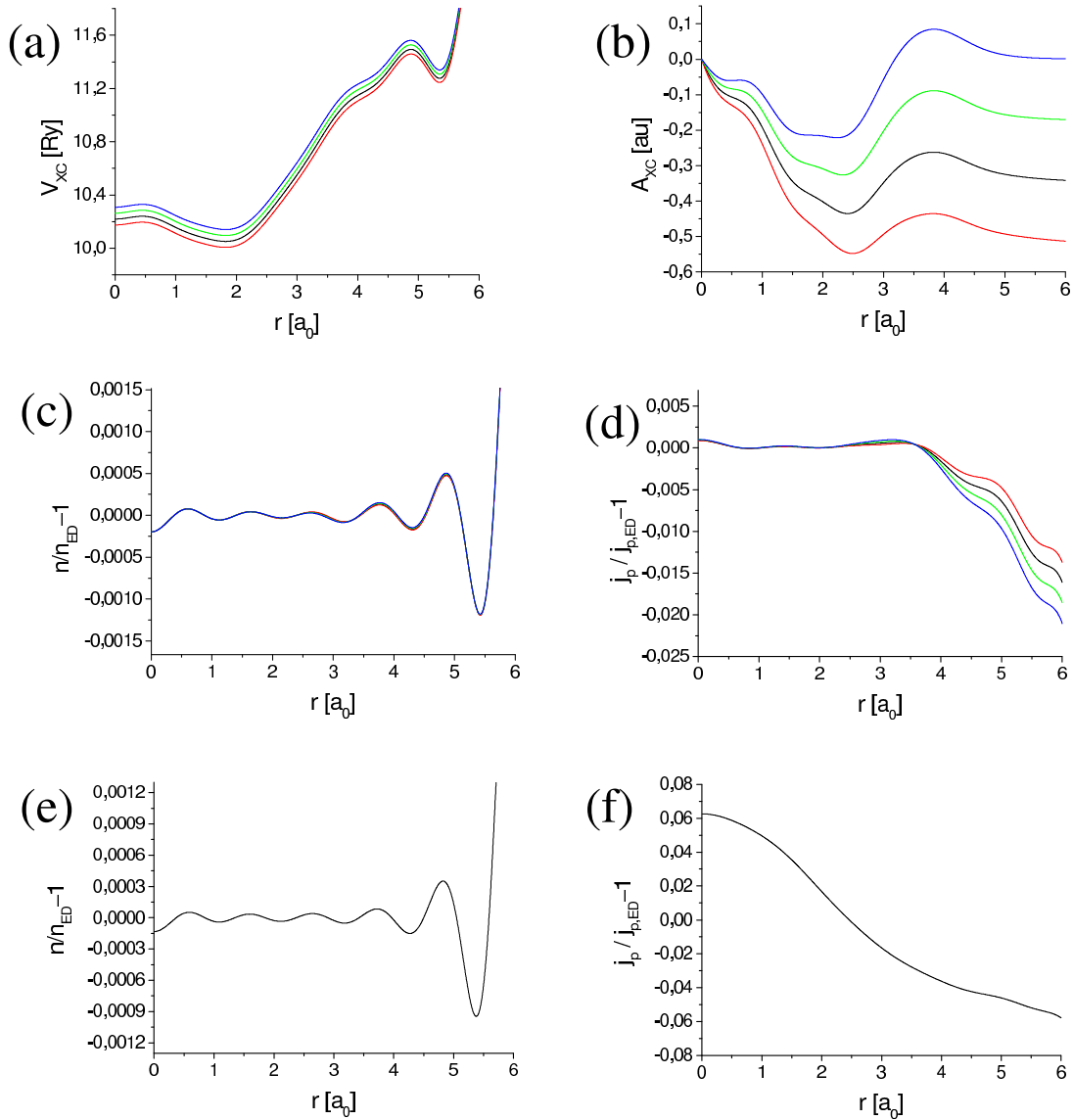


ABBILDUNG 6.15: Die Abbildung zeigt Rechnungen für das Vierelektronen- $\nu = 2$ -Droplet ($\hbar\omega_h = 5\text{meV}$), die mit verschiedenen Werten für die XC-Potentiale initialisiert wurden. In (a) und (b) sind die (ungeeichten) skalaren XC-Potentiale und die XC-Vektorpotentiale dargestellt, die die ED-Referenzdichten mit ähnlichen Fehlern (c), (d) reproduzieren. (Gleiche Farben kennzeichnen die Größen einer Rechnung.) (e) und (f) zeigen die relativen Fehler in Dichte und paramagnetischer Stromdichte, falls auf das XC-Vektorpotential verzichtet wird.

Wie im letzten Abschnitt ist daher wieder kein zuverlässiger numerischer Zugang zu XC-Potentialen möglich. Allerdings erlaubt die Struktur des $\nu = 2$ -Droplets für vier Elektronen eine direkte Berechnung der XC-Potentiale. Da in diesem System nur die jeweils untersten KS-Niveaus mit den Drehimpulsen 0 und -1 besetzt sind, können wir analog zum $\nu = 1$ -Droplet mit zwei Elektronen V_{XC} aus dem Unterraum mit $l = 0$ und in einem weiteren Schritt A_{XC} aus dem Unterraum mit $l = -1$ bestimmen. Die entsprechenden Formeln lassen sich aus denen in Abschnitt 5.4.2 gewinnen, indem dort die Dichte (paramagnetische Stromdichte) durch die Dichte (paramagnetische Stromdichte) einer Spinrichtung ersetzt wird.

Die Abbildung 6.16 zeigt das aus den ED-Dichten (a) und (b) analytisch berechnete XC-Vektorpotential (d) und XC-Potential (e) für $\hbar\omega = 5\text{meV}$. Wie im Fall des $\nu = 1$ -Droplets für zwei Elektronen (Abbildung 6.12) ist das XC-Vektorpotential negativ. Interessant ist allerdings der Unterschied zum $\nu = 1$ -Droplet im Dotzentrum. Im Gegensatz zum $\nu = 1$ -QHD mit zwei Teilchen finden wir hier einen weitgehend linearen Abfall des XC-Vektorpotentials für kleine Radien. Über die Asymptotik von A_{XC} lassen sich hingegen aufgrund mangelnder Genauigkeit der ED-Dichten keine Schlüsse ziehen. Für das skalare XC-Potential in 6.16(e) (schwarze, gestrichelte Linie) finden wir deutliche Korrekturen gegenüber dem TC-XC-Potential^{††} (graue, durchgezogene Linie). Zusammen mit dem XC-Vektorpotential pflanzen sich diese Abweichungen in der XC-Energiedichte (f) fort. Insbesondere für $r < 4a_0$, wo sich die Vortizität bei annähernd konstanter Dichte stark ändert, ist die extrahierte XC-Energiedichte größer als die TC-Referenzenergiedichte. Der dominierende Einfluß des XC-Vektorpotentials im Dotzentrum klingt erst langsam mit höheren Confinement-Energien ab.

In Abbildung 6.17 untersuchen wir die skalaren XC-Potentiale* und die XC-Vektorpotentiale für verschiedene $\hbar\omega_h$. Die Berechnung auf Grundlage der ED-Dichten erfolgte analytisch wie für die $\nu = 1$ -Droplets. Das Profil von A_{XC} ist wiederum nur im Dotzentrum hinreichend exakt, wo die ED eine ausreichende Genauigkeit der Dichten garantiert, über die Asymptotik sind keine Aussagen möglich. Der Einfluß der mangelnden Genauigkeit von A_{XC} am Rand auf die extrahierten XC-Energiedichten ist jedoch marginal, da in der Berechnung der DGL (5.22) A_{XC} mit der Dichte oder der paramagnetischen Stromdichte gewichtet wird, die beide schnell gegen Null konvergieren. Wie für das Zweielektronen- $\nu = 1$ -Droplet ist die Amplitude von A_{XC} von der Stärke des externen Potentials weniger abhängig als die Tiefe des XC-Potentials.

Abschließend betrachten wir die XC-Energiedichte als Funktion des Dichteparameters r_s und der Vortizität ν . Anders als in früheren Rechnungen ist hier die Redundanz der Ergebnisse äußerst beschränkt, da nur das Vierelektronen-System mit verlässlichen Resultaten für A_{XC} vorliegt. In Abbildung 6.18 sind die Werte für ε_{XC} als Funktion von r_s für verschiedene Vortizitäten zusammengefaßt. Die Ergebnisse für ε_{XC} wurden aus Rechnungen mit verschiedenen Confinement-Potentialen[†] extrahiert und stammen jeweils aus dem Dotzentrum. Zum Vergleich sind zusätzlich die TC-XC-Energiedichte

^{††}Für das TC-XC-Potential wie für die TC-Energiedichte wurden keine Stromkorrekturen berücksichtigt.

*Die skalaren XC-Potentiale sind nicht geeicht.

[†]3meV, 4meV, 5meV, 6meV, 7meV, 8meV, 9meV, 10meV, 20meV, 30meV, 40meV, 50meV, 60meV, 70meV, 80meV, 90meV, 100meV

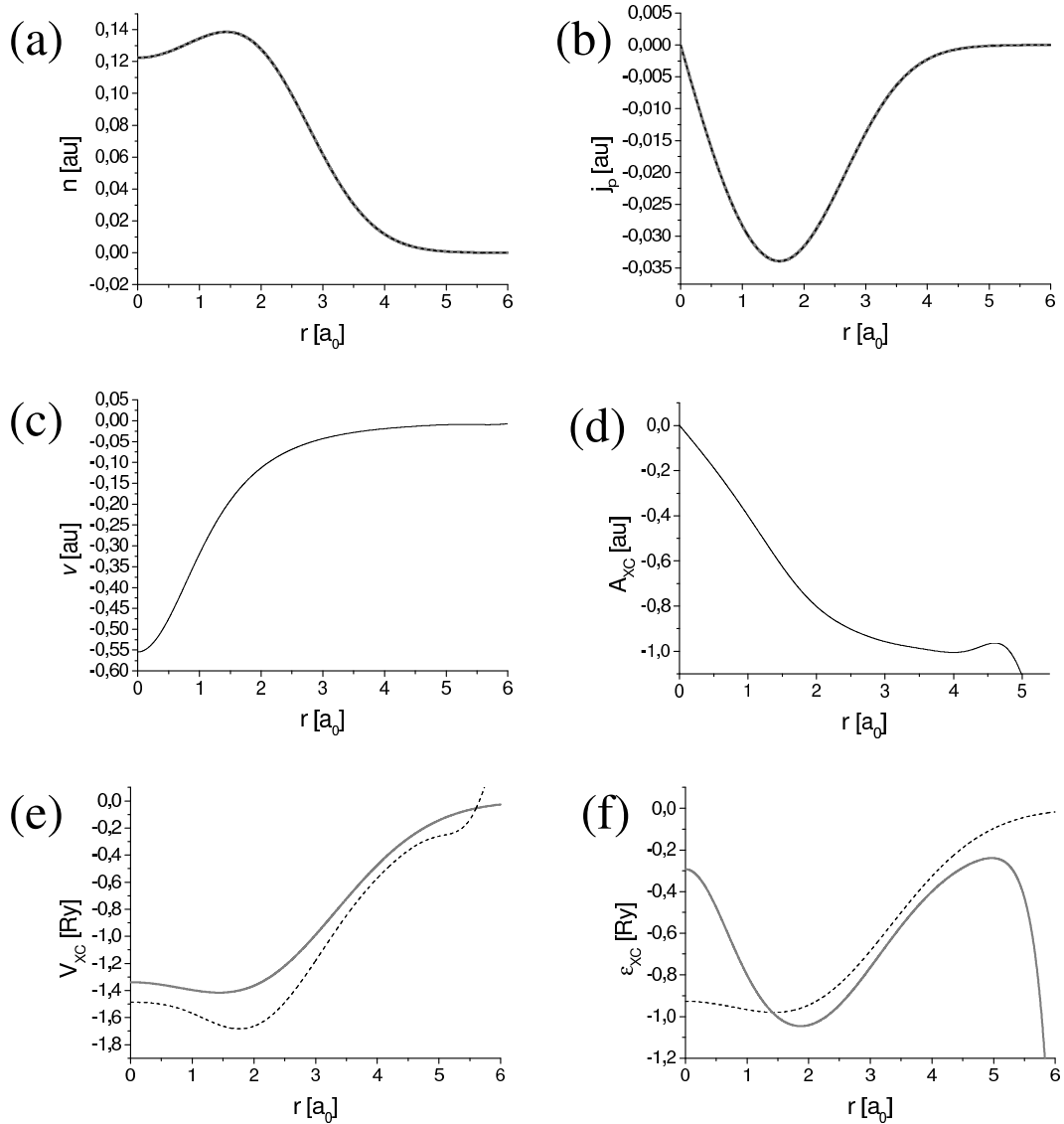


ABBILDUNG 6.16: Diese Abbildung zeigt die Inversion der KS-Gleichungen für ein System von vier Elektronen mit einem Confinement-Potential von 5meV. Das XC-Potential (schwarze, gestrichelte Linie) in (e) und das XC-Vektorpotential in (d) reproduzieren das Dichteprofil und die paramagnetische Stromdichte der ED (graue, durchgezogene Linie in (a) bzw. (b)). In (e) ist zum Vergleich das TC-XC-Potential (d.h. ohne stromabhängige Korrekturen) in einer grauen, durchgezogenen Linie dargestellt. (c) ist die Vortizität, und (f) zeigt die TC-XC-Energiedichte (grau, durchgezogen) versus extrahierter XC-Energiedichte (schwarz, gestrichelt).

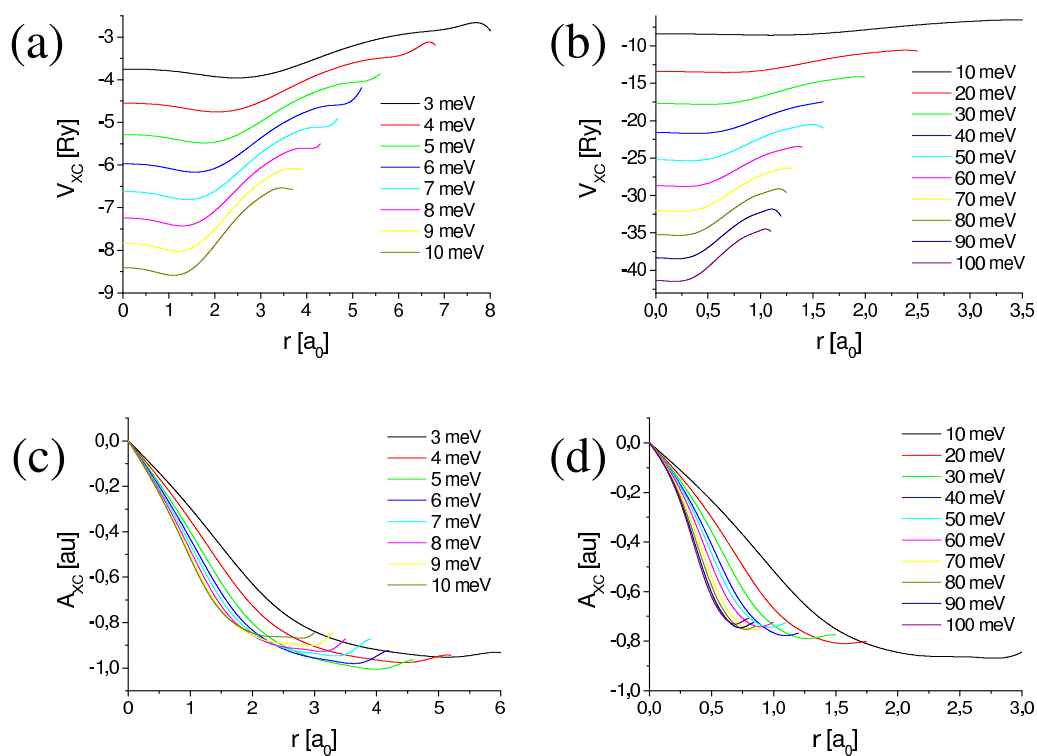


ABBILDUNG 6.17: (Ungeechte) skalare XC-Potentiale (a), (b) und XC-Vektorpotentiale (c), (d) des $\nu = 2$ -Droplets mit vier Elektronen für verschiedene Potentialstärken.

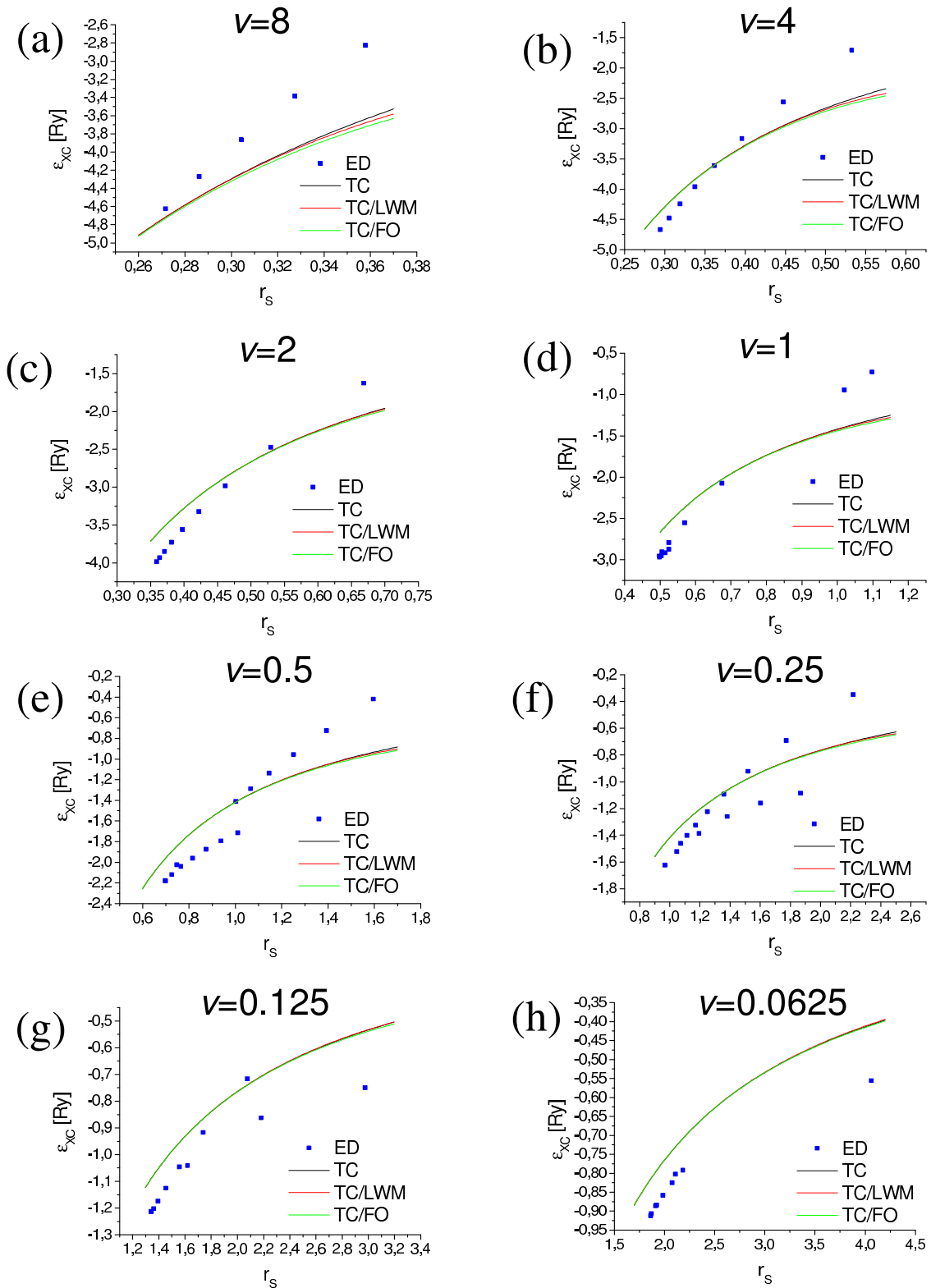


ABBILDUNG 6.18: Aus dem $\nu = 2$ -Droplet mit vier Elektronen extrahierte XC-Energiedichten (Rechtecke) als Funktion von Dichteparameter r_s und Vortizität ν im Vergleich mit TC-, TC/LWM- bzw. TC/FO-Referenzkurven.

ohne stromabhängige Korrekturen sowie die TC-XC-Kurve zusammen mit LWM- bzw. FO-Parametrisierung dargestellt. Sowohl LWM als auch FO weichen nur geringfügig von der TC-Parametrisierung ab, während die Unterschiede zwischen dem extrahierten ε_{XC} und den Referenzkurven bedeutend größer ausfallen.

Insbesondere liegen die XC-Energiedichten für hohe Vortizitäten, die im Dotzenzentrum auftreten (vgl. Abbildung 6.16(f)), oberhalb der Referenzkurven. Erst mit kleineren Dichteparametern sinken die extrahierten Werte wieder unter die Referenzkurve. Dabei wandert der Schnittpunkt zwischen den beiden XC-Energiedichtekurven mit abnehmendem v zu größeren Dichteparametern (vgl. Abbildung 6.18(a)-(d)). Für die Teilabbildungen 6.18(e)-(h) liegt prinzipiell dasselbe Verhalten vor. Allerdings streuen hier die Werte um die Referenzkurven, da kleine Vortizitäten und große r_s nur etwas von der Dotmitte entfernt in Systemen mit großem $\hbar\omega_h$ vorliegen. Generell ist die Datenbasis hier zu klein, um quantitative Angaben über die Abhängigkeit der XC-Energiedichte von der Vortizität zu erzielen. Erst ein verbessertes Iterationsverfahren zur Berechnung von XC-Vektorpotentialen würde detailliertere Aussagen erlauben. Insbesondere kann dann geklärt werden, ob die starke Abhängigkeit der XC-Energiedichte von der Vortizität, die sich in den Ergebnissen für vier Elektronen andeutet, ein Phänomen ist, das sich im Rahmen der lokalen Dichtenäherung behandeln lässt, oder ob vielmehr nicht-lokale Effekte die Korrekturen der XC-Energiedichten durch Ströme dominieren.

Zusammenfassung und Ausblick

Im ersten Teil der vorliegenden Arbeit behandeln wir die Grundlagen der Dichtefunktional-Theorie und der Exakten Diagonalisierung und wenden beide Vielteilchen-Theorien auf wechselwirkende Elektronen in zweidimensionalen Halbleiter-Quantenpunkten im Magnetfeld an.

Zuerst diskutieren wir die Dichtefunktional-Theorie und ihre Verallgemeinerungen, d.h. die Spin-Dichtefunktional-Theorie und die Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie. Die Erweiterungen erlauben die Berücksichtigung des Spinfreiheitsgrads bzw. die Ankopplung der (paramagnetischen) Stromdichte an das Magnetfeld. Deshalb liefern die generalisierten Konzepte nicht nur Grundzustandsenergie und -dichte, sondern auch die Magnetisierung und die Stromdichte. Die Dichtefunktional-Theorie beruht auf der Abbildung des wechselwirkenden Vielteilchen-Systems auf ein effektives Einteilchen-System, das Kohn-Sham-System. Dabei setzt sich das Einteilchen-Potential zusammen aus externem Potential, Hartree-Potential, skalarem Austausch-Korrelations-Potential und – im Fall der Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie – einem Austausch-Korrelations-Vektorpotential. In die Berechnung der beiden letztgenannten Potentiale geht die lokale Dichtenäherung (LDA) ein, die wiederum von Austausch-Korrelations-Energien homogener Systeme abhängt. Die LDA ist notwendig, da die funktionale Abhängigkeit der Austausch-Korrelations-Potentiale (und auch der Austausch-Korrelations-Energie selbst) unbekannt ist. Die Austausch-Korrelations-Energien homogener Systeme liegen parametrisiert als Funktion von Dichteparameter und Polarisierung vor,^{7,145,153} die stromabhängigen Korrekturen hängen vom lokalen Füllfaktor statt von der Vortizität ab.

Trotz der durch die Unkenntnis des exakten Austausch-Korrelations-Funktional bedingten Unsicherheit sind Dichtefunktional-Theorie-Rechnungen anderen effektiven Einteilchen-Methoden wie z.B. Hartree-Fock an Genauigkeit überlegen. Dies demonstrieren wir am Beispiel der Amplitudenmodulation entlang der $\nu = 2$ -Linie im Coulomb-Blockade-Spektrum von Quantenpunkten im Magnetfeld. Die Beschränkung auf Austauscheffekte in Hartree-Fock-Rechnungen führt zu einer unzureichenden Beschreibung der Grundzustände und ihrer Übergänge im Magnetfeld. Erst die Einbeziehung von Korrelationseffekten im Rahmen der Dichtefunktional-Theorie liefert eine korrekte Beschreibung der Stabilität der Grundzustandskonfigurationen in der Umgebung der $\nu = 2$ -Linie. Die mit Hilfe der Spin-Dichtefunktional-Theorie und

der lokalen Spin-Dichtenäherung ermittelten Grundzustandsübergänge geben das im Experiment²⁶ beobachtete Amplitudenmuster korrekt wieder.

Die erfolgreiche Beschreibung eines Experiments durch die Dichtefunktional-Theorie darf nicht darüber hinwegtäuschen, daß es durchaus notwendig ist, sie weiter zu verbessern. Dies betrifft speziell das Austausch-Korrelations-Funktional bzw. in der lokalen Dichtenäherung die Austausch-Korrelations-Energiedichten für zweidimensionale Systeme: Es liegen keine Gradientenkorrekturen vor, die Austausch-Korrelations-Energiedichten sind seit der Pionierarbeit von Tanatar & Ceperley (1989¹⁵³) erst in jüngster Zeit wieder ins Zentrum des Interesses gerückt (Seidl (2001¹⁴⁵), Attaccalite et al. (2002⁷)), und die Berücksichtigung der Stromkorrekturen ist zweifelhaft. Aus dieser Situation heraus entstand die Motivation für den zweiten Teil der Arbeit, die Untersuchung der Austausch-Korrelations-Energiedichten in zwei Dimensionen als Funktion von Dichteparameter, Polarisierung und Vortizität. Als Ausgangspunkt dafür wählen wir „exakte“ Grundzustandsenergien und -dichten. Da diese allerdings selbst für kleine Elektronenzahlen nicht vorliegen, sind wir auf die Exakte Diagonalisierung angewiesen, die die besten verfügbaren Ergebnisse für Energien und Dichten liefert.

Deshalb entwickelten wir für Quantenpunkte mit zwei bis acht Elektronen ein Programm zur Exakten Diagonalisierung der Hamiltonian-Matrix des Vielteilchen-Systems. Ziel des Konzepts ist die Berücksichtigung einer möglichst großen Basis von Slater-Determinanten. Dazu nutzen wir die Symmetrien des Hamilton-Operators, d.h. neben dem Gesamtdrehimpuls und dem Gesamtspin in z-Richtung auch den Gesamtspin und teilweise die Schwerpunktbewegung, konsequent aus, was zu einer erheblichen Reduzierung der effektiven Matrixgröße führt. Die vorliegende Implementierung der Exakten Diagonalisierung erlaubt die Berechnung von Grundzuständen und niedrigsten angeregten Zuständen mit bis zu 1.2 Millionen Slater-Determinanten. Aus den Vielteilchen-Wellenfunktionen berechnen wir die Referenzdichten für die Vergleiche mit der Dichtefunktional-Theorie. Darüber hinaus bieten die Exakten Diagonalisierungen weiteres Anwendungspotential. Zum einen ist eine Berücksichtigung von anharmonischen Anteilen im externen Potential einfach zu implementieren. Andererseits wird erwartet, daß die Wechselwirkung von Elektronen mit permanenten magnetischen Momenten,⁸³ wie sie z.B. durch eine Dotierung von Quantenpunkten mit Mangan-Ionen realisiert werden kann, neue interessante Phänomene zeigt. Ein Quantenpunkt mit Mangan-Ionen im Zentrum könnte problemlos in das bestehende Konzept der Exakten Diagonalisierung integriert werden.

Der zweite Teil der Arbeit befaßt sich mit der Inversion der Kohn-Sham-Gleichungen und der Extraktion von Austausch-Korrelations-Energien. Zunächst diskutieren wir die theoretischen Voraussetzungen für die Eindeutigkeit der Austausch-Korrelations-Potentiale und stellen fest, daß sie für die Reskalierung des Systems auf den magnetfeldfreien Fall gewährleistet ist. Im Anschluß daran präsentieren wir ein numerisches Konzept zur Inversion der Kohn-Sham-Gleichungen der Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie, d.h. zur Bestimmung der Austausch-Korrelations-Potentiale. Aus den Austausch-Korrelations-Potentialen kann unter der Annahme der lokalen Dichtenäherung die Austausch-Korrelations-Energiedichte als Funktion von Dichteparameter, Polarisierung und Vortizität ermittelt werden. Wir wenden das Verfahren auf verschiedene Systeme an, die nach Stromdichte und Polarisierung klassi-

fiziert sind, und vergleichen die extrahierten Austausch-Korrelations-Energiedichten mit Literaturwerten. Für unpolarisierte, teilweise und vollständig polarisierte Systeme ohne paramagnetische Stromdichte finden wir vergleichsweise geringe Abweichungen zu Parametrisierungen in der Literatur. Da der Parameterbereich begrenzt ist und zugleich nicht-lokale Effekte in die Austausch-Korrelations-Energien mit einfließen, ist die Aussagekraft nicht uneingeschränkt. Allerdings ist die für alle Polarisierungen und alle Teilchenzahlen festgestellte Tendenz zu niedrigeren Austausch-Korrelations-Energiedichten bei kleinen Dichteparametern systematisch und in den gängigen Parametrisierungen nicht erfaßt. Eine Überprüfung dieses Resultats mit alternativen Methoden ist wünschenswert. Ein möglicher Ansatz wäre die Berücksichtigung weiterer Terme in der ISI-Methode¹⁴⁵.

Problematisch ist hingegen die Behandlung von Systemen mit paramagnetischer Stromdichte. Die nicht eindeutigen Austausch-Korrelations-Potentiale als Ergebnis des Iterationsschemas stehen im Widerspruch zu der analytisch gezeigten Eindeutigkeit. Zuverlässige Resultate lassen sich für vollständig polarisierte bzw. unpolarisierte Systeme nur in Spezialfällen mit zwei bzw. vier Elektronen erzielen. Aufgrund der mangelnden Redundanz an Werten für die Austausch-Korrelations-Energien sind nur qualitative Aussagen möglich. Eine Verbesserung des Iterationsverfahrens zur Berechnung zuverlässiger Austausch-Korrelations-Vektorpotentiale würde die Datenbasis entscheidend erweitern.

Zuletzt weisen wir darauf hin, daß jenseits des konventionellen Konzepts der Dichtefunktional-Theorie Verallgemeinerungen existieren, die auch in Zusammenhang mit zweidimensionalen Systemen interessant sind. Zum einen ist die Formulierung der Dichtefunktional-Theorie auf Basis der Einteilchen-Dichtematrix zu nennen, wie sie von Zumbach & Maschke (1985¹⁸⁴) vorgeschlagen wurde. Mit Hilfe der Einteilchen-Dichtematrix ist es möglich, das Funktional der kinetischen Energie exakt zu berechnen und damit den Anteil der zu parametrisierenden Größen an der Gesamtenergie zu reduzieren. Im Gegenzug wird allerdings die Austausch-Korrelations-Energiedichte nicht-lokal, was eine gute Approximation dieser Größe erschwert. Noch einen Schritt weiter geht die Dichtefunktional-Theorie auf Grundlage der Zweiteilchen-Dichtematrizen und der kontrahierten Schrödinger-Gleichung (z.B. Mazziotti (1998¹⁰⁶)). Die modifizierte Form der Schrödinger-Gleichung hängt allerdings neben der Zweiteilchen-Dichtematrix auch von der Vierteilchen-Dichtematrix ab. Letzere ist zwar eindeutig durch die Zweiteilchen-Dichtematrix bestimmt, kann aber nur unter Verwendungen von Näherungen berechnet werden. Dies ist – neben der Frage der Repräsentabilität der Zweiteilchen-Dichtematrix – die bedeutendste Herausforderung des Verfahrens. Dafür erlaubt die Methode die Berechnung der Erwartungswerte beliebiger Einteilchen- und Zweiteilchen-Operatoren.

ANHANG A

Coulomb-Matrixelemente

Die analytische Berechnung der Coulomb-Matrixelemente in der FD-Basis, d.h. mit Hilfe der Eigenfunktionen des zweidimensionalen, isotropen harmonischen Oszillators, ist ein entscheidender Schritt, um eine numerisch genaue ED-Methode zu implementieren. In diesem Teil des Anhangs wird zunächst eine analytische Darstellung für die Matrixelemente in Anlehnung an die Arbeit von Hawrylak (1993⁵⁶) abgeleitet. Im zweiten Teil wird die numerische Stabilität des entsprechenden Ausdrucks untersucht sowie eine numerisch exakte Implementierung präsentiert.

A.1 Notation und Theoreme

Aus Abschnitt 1.1.2 ist die Darstellung der x - und y -Koordinaten als Funktionen der Erzeugungs- ($\hat{a}_-^\dagger, \hat{a}_+^\dagger$) und Vernichtungsoperatoren ($\hat{a}_-, \hat{a}_+$) bekannt

$$x = \frac{l}{2} (\hat{a}_+ + \hat{a}_+^\dagger + \hat{a}_- + \hat{a}_-^\dagger) \quad y = \frac{il}{2} (\hat{a}_+ - \hat{a}_+^\dagger - \hat{a}_- + \hat{a}_-^\dagger). \quad (\text{A.1})$$

Für die FD-Zustände $|N, M\rangle$ gilt

$$\hat{n}_+ |N, M\rangle = N |N, M\rangle \quad \hat{n}_- |N, M\rangle = M |N, M\rangle \quad (\text{A.2})$$

und die Ortsdarstellung lautet $\langle \mathbf{r} | N, M \rangle = \alpha_{N,M}(\mathbf{r})$.

Die Coulomb-Wechselwirkung ist durch

$$W(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = C \frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|}, \quad C = \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0} \quad (\text{A.3})$$

gegeben.

Ferner werden wir die Feynman-Formel⁹⁹

$$e^{\hat{A}+\hat{B}} = e^{\hat{A}} e^{\hat{B}} e^{-\frac{1}{2}[\hat{A}, \hat{B}]} \quad (\text{A.4})$$

für Operatoren $\hat{A}$ und $\hat{B}$ verwenden, die

$$[\hat{A}, [\hat{A}, \hat{B}]] = [\hat{B}, [\hat{A}, \hat{B}]] = 0 \quad (\text{A.5})$$

erfüllen.

A.2 Die Fourier-Transformierte des Coulomb-Potentials in zwei Dimensionen

Wir wollen $V(q)$ berechnen, so daß

$$\int d\mathbf{q}' V(\mathbf{q}') e^{i\mathbf{q}' \cdot \mathbf{r}} = \frac{1}{|\mathbf{r}|} \quad (\text{A.6})$$

gilt. Dazu multiplizieren wir mit $\exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r})$, integrieren über die Ebene und erhalten

$$\int d\mathbf{r} \int d\mathbf{q}' V(\mathbf{q}') e^{i(\mathbf{q}' - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{r}} = \int d\mathbf{r} \frac{1}{|\mathbf{r}|} e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}}. \quad (\text{A.7})$$

Für die rechte Seite benutzen wir Polarkoordinaten $\mathbf{r} = (r \cos \varphi, r \sin \varphi)$, $\mathbf{q} = (q \cos \beta, q \sin \beta)$ und führen einige Umformungen durch:

$$\begin{aligned} \int d\mathbf{q}' V(\mathbf{q}') \int d\mathbf{r} e^{i(\mathbf{q}' - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{r}} &= \int_0^\infty dr r \int_0^{2\pi} \frac{1}{r} e^{-iqr(\cos \varphi \cos \beta + \sin \varphi \sin \beta)} \\ \int d\mathbf{q}' V(\mathbf{q}') 4\pi^2 \delta(\mathbf{q}' - \mathbf{q}) &= \int_0^\infty dr \int_0^{2\pi} e^{-iqr(\cos(\varphi - \beta))} \\ 4\pi^2 V(\mathbf{q}) &= \int_0^\infty dr \int_0^{2\pi} e^{-iqr \cos \varphi} \quad (\text{Integration über eine Periode}) \\ V(\mathbf{q}) &= \frac{1}{2\pi^2} \int_0^\infty dr \int_0^\pi e^{iqr \cos \varphi} \\ V(\mathbf{q}) &= \frac{1}{2\pi^2} \int_0^\infty dr \pi J_0(qr) \quad (\text{Gradshteyn \& Ryzhik (1980}^{50}\text{), 3.915/2}) \\ V(\mathbf{q}) &= \frac{1}{2\pi} \frac{1}{q} \quad (\text{Gradshteyn \& Ryzhik (1980}^{50}\text{), 6.511/1}). \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

Somit können wir die Coulomb-Wechselwirkung in folgender Form schreiben

$$W(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{C}{2\pi} \int d\mathbf{q} \frac{1}{q} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)}. \quad (\text{A.9})$$

A.3 Berechnung der Matrixelemente

Unser Ziel ist das Coulomb-Matrixelement

$$\begin{aligned} & {}^{(2)}\langle N'_2, M'_2 | {}^{(1)}\langle N'_1, M'_1 | W | N_1, M_1 \rangle^{(1)} | N_2, M_2 \rangle^{(2)} \\ &= \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \alpha_{N'_2, M'_2}^*(\mathbf{r}_2) \alpha_{N'_1, M'_1}^*(\mathbf{r}_1) \frac{C}{2\pi} \int d\mathbf{q} \frac{1}{q} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)} \alpha_{N_1, M_1}(\mathbf{r}_1) \alpha_{N_2, M_2}(\mathbf{r}_2) \\ &= \frac{C}{2\pi} \int d\mathbf{q} \frac{1}{q} \left\{ \int d\mathbf{r}_1 \alpha_{N'_1, M'_1}^*(\mathbf{r}_1) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1} \alpha_{N_1, M_1}(\mathbf{r}_1) \right\} \left\{ \int d\mathbf{r}_2 \alpha_{N'_2, M'_2}^*(\mathbf{r}_2) e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_2} \alpha_{N_2, M_2}(\mathbf{r}_2) \right\}. \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

Zunächst konzentrieren wir uns auf den folgenden Ausdruck, der unter Ausnutzung von (A.1)

$$\begin{aligned} & \int d\mathbf{r} \alpha_{N',M'}^*(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \alpha_{N,M}(\mathbf{r}) \\ &= \langle N', M' | e^{i\{k_x \frac{l}{2}(\hat{a}_+ + \hat{a}_+^\dagger + \hat{a}_- + \hat{a}_-^\dagger) + k_y \frac{l}{2}(\hat{a}_+ - \hat{a}_+^\dagger - \hat{a}_- + \hat{a}_-^\dagger)\}} | N, M \rangle \quad (\text{da } [\hat{a}_+^{(\dagger)}, \hat{a}_-^{(\dagger)}] = 0) \\ &= \langle N', M' | e^{i\frac{l}{2}\{\hat{a}_+^\dagger(k_x - ik_y) + \hat{a}_+(k_x + ik_y)\}} e^{i\frac{l}{2}\{\hat{a}_-^\dagger(k_x + ik_y) + \hat{a}_-(k_x - ik_y)\}} | N, M \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

und Definition der Abkürzung $K = \frac{l}{2}(k_x + ik_y)$ umgeformt werden kann

$$\begin{aligned} & \int d\mathbf{r} \alpha_{N',M'}^*(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \alpha_{N,M}(\mathbf{r}) \\ &= \langle N', M' | e^{i\{\hat{a}_+^\dagger K^* + \hat{a}_+ K\}} e^{i\{\hat{a}_-^\dagger K + \hat{a}_- K^*\}} | N, M \rangle \\ &= \langle N' | e^{i\{\hat{a}_+^\dagger K^* + \hat{a}_+ K\}} | N \rangle \langle M' | e^{i\{\hat{a}_-^\dagger K + \hat{a}_- K^*\}} | M \rangle. \end{aligned} \quad (\text{A.12})$$

Dann wenden wir uns dem Ausdruck

$$\langle P' | e^{i\{\hat{a}^\dagger \tilde{K}^* + \hat{a} \tilde{K}\}} | P \rangle \quad (\text{A.13})$$

zu. An dieser Stelle nutzen wir die Feynman-Formel⁹⁹ (A.4) für die Operatoren $i\tilde{K}^*\hat{a}^\dagger$ und $i\tilde{K}\hat{a}$, die offensichtlich (A.5) erfüllen ($[i\tilde{K}^*\hat{a}^\dagger, i\tilde{K}\hat{a}] = |\tilde{K}|^2$)

$$\begin{aligned} & \langle P' | e^{i\{\hat{a}^\dagger \tilde{K}^* + \hat{a} \tilde{K}\}} | P \rangle \\ &= \langle P' | e^{i\hat{a}^\dagger \tilde{K}^*} e^{i\hat{a} \tilde{K}} e^{-\frac{1}{2}|\tilde{K}|^2} | P \rangle \\ &= e^{-\frac{1}{2}|\tilde{K}|^2} \sum_{Z=0}^{\infty} \langle P' | e^{i\hat{a}^\dagger \tilde{K}^*} | Z \rangle \langle Z | e^{i\hat{a} \tilde{K}} | P \rangle. \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

Jetzt untersuchen wir

$$\begin{aligned} & \langle P' | e^{i\hat{a}^\dagger \tilde{K}^*} | Z \rangle \\ &= \sum_{l=0}^{\infty} \frac{1}{l!} (i\tilde{K}^*)^l \langle P' | (\hat{a}^\dagger)^l | Z \rangle \\ &= \sum_{l=0}^{\infty} \frac{1}{l!} (i\tilde{K}^*)^l \sqrt{\frac{(l+Z)!}{Z!}} \underbrace{\langle P' | Z+l \rangle}_{=\delta_{P',Z+l}} \quad (\neq 0 \text{ nur für } P' \geq Z) \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

$$= \frac{1}{(P' - Z)!} (i\tilde{K}^*)^{P' - Z} \sqrt{\frac{P'!}{Z!}} \quad (\text{A.16})$$

und

$$\begin{aligned} & \langle Z | e^{i\hat{a} \tilde{K}} | P \rangle \\ &= \sum_{l=0}^{\infty} \frac{1}{l!} (i\tilde{K})^l \langle Z | \hat{a}^l | P \rangle \\ &= \sum_{l=0}^{\infty} \frac{1}{l!} (i\tilde{K})^l \sqrt{\frac{(l+Z)!}{Z!}} \underbrace{\langle Z+l | P \rangle}_{=\delta_{Z+l,P}} \quad (\neq 0 \text{ nur für } P \geq Z) \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

$$= \frac{1}{(P - Z)!} (i\tilde{K})^{P - Z} \sqrt{\frac{P!}{Z!}}. \quad (\text{A.18})$$

Wir setzen (A.15)-(A.18) in Formel (A.14) ein und erhalten

$$\begin{aligned}
& \langle P' | e^{i\{\hat{a}^\dagger \tilde{K}^* + \hat{a} \tilde{K}\}} | P \rangle \\
&= e^{-\frac{1}{2}|\tilde{K}|^2} \sum_{Z=0}^{\infty} \langle P' | e^{i\hat{a}^\dagger \tilde{K}^*} | Z \rangle \langle Z | e^{i\hat{a} \tilde{K}} | P \rangle \\
&= e^{-\frac{1}{2}|\tilde{K}|^2} \sum_{Z=0}^{\min(P, P')} \frac{1}{(P' - Z)!} (i\tilde{K}^*)^{P' - Z} \sqrt{\frac{P'!}{Z!}} \frac{1}{(P - Z)!} (i\tilde{K})^{P - Z} \sqrt{\frac{P!}{Z!}} \\
&= \frac{1}{\sqrt{P'!P!}} e^{-\frac{1}{2}|\tilde{K}|^2} \sum_{Z=0}^{\min(P, P')} Z! \frac{P'!}{Z! (P' - Z)!} \frac{P!}{Z! (P - Z)!} (i\tilde{K}^*)^{P' - Z} (i\tilde{K})^{P - Z} \\
&= \frac{1}{\sqrt{P'!P!}} e^{-\frac{1}{2}|\tilde{K}|^2} \sum_{Z=0}^{\min(P, P')} Z! \binom{P'}{Z} \binom{P}{Z} (i\tilde{K}^*)^{P' - Z} (i\tilde{K})^{P - Z}. \tag{A.19}
\end{aligned}$$

Damit können wir (A.12) unter Verwendung von (A.19) mit $\hat{a}^{(\dagger)} = \hat{a}_+^{(\dagger)}$, $P' = N'$, $P = N$, $Z = n$ und $\tilde{K} = K$ auswerten:

$$\begin{aligned}
& \langle N' | e^{i\{\hat{a}_+^\dagger K^* + \hat{a}_+ K\}} | N \rangle \\
&= \frac{1}{\sqrt{N'!N!}} e^{-\frac{1}{2}|K|^2} \sum_{n=0}^{\min(N, N')} n! \binom{N'}{n} \binom{N}{n} (iK^*)^{N' - n} (iK)^{N - n}. \tag{A.20}
\end{aligned}$$

Mit $\hat{a}^{(\dagger)} = \hat{a}_-^{(\dagger)}$, $P' = M'$, $P = M$, $Z = m$ und $\tilde{K} = K^*$ erhalten wir

$$\begin{aligned}
& \langle M' | e^{i\{\hat{a}_-^\dagger K + \hat{a}_- K^*\}} | M \rangle \\
&= \frac{1}{\sqrt{M'!M!}} e^{-\frac{1}{2}|K|^2} \sum_{m=0}^{\min(M, M')} m! \binom{M'}{m} \binom{M}{m} (iK)^{M' - m} (iK^*)^{M - m}. \tag{A.21}
\end{aligned}$$

Somit ist das Ergebnis der Gleichung (A.12)

$$\begin{aligned}
& \int d\mathbf{r} \alpha_{N', M'}^*(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \alpha_{N, M}(\mathbf{r}) \\
&= \frac{e^{-|K|^2}}{\sqrt{N'!N!M'!M!}} \sum_{n=0}^{\min(N, N')} n! \binom{N'}{n} \binom{N}{n} \sum_{m=0}^{\min(M, M')} m! \binom{M'}{m} \binom{M}{m} \times \\
&\times (iK^*)^{N' + M - n - m} (iK)^{N + M' - n - m}. \tag{A.22}
\end{aligned}$$

Einsetzen von (A.22) in Ausdruck (A.10) mit K für den Index '1' und mit $-K$ für den Index '2' ($K = \frac{1}{2}(q_x + iq_y) = \frac{1}{2}qe^{i\beta}$) liefert

$$\begin{aligned}
& {}^{(2)}\langle N'_2, M'_2 | {}^{(1)}\langle N'_1, M'_1 | W | N_1, M_1 \rangle {}^{(1)} | N_2, M_2 \rangle {}^{(2)} \\
&= \frac{C}{2\pi} \int d\mathbf{q} \frac{1}{q} \left\{ \int d\mathbf{r}_1 \alpha_{N'_1, M'_1}^*(\mathbf{r}_1) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1} \alpha_{N_1, M_1}(\mathbf{r}_1) \right\} \times \\
&\quad \left\{ \int d\mathbf{r}_2 \alpha_{N'_2, M'_2}^*(\mathbf{r}_2) e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_2} \alpha_{N_2, M_2}(\mathbf{r}_2) \right\} \\
&= \frac{C}{2\pi} \frac{1}{\sqrt{N'_1! N_1! M'_1! M_1! N'_2! N_2! M'_2! M_2!}} \times \\
&\quad \times \sum_{n_1=0}^{\min(N_1, N'_1)} n_1! \binom{N'_1}{n_1} \binom{N_1}{n_1} \sum_{m_1=0}^{\min(M_1, M'_1)} m_1! \binom{M'_1}{m_1} \binom{M_1}{m_1} \times \\
&\quad \times \sum_{n_2=0}^{\min(N_2, N'_2)} n_2! \binom{N'_2}{n_2} \binom{N_2}{n_2} \sum_{m_2=0}^{\min(M_2, M'_2)} m_2! \binom{M'_2}{m_2} \binom{M_2}{m_2} \times \\
&\quad \times \int d\mathbf{q} \frac{1}{q} e^{-2|K|^2} (iK^*)^{N'_1+M_1-n_1-m_1} (iK)^{N_1+M'_1-n_1-m_1} \times \\
&\quad \times (-iK^*)^{N'_2+M_2-n_2-m_2} (-iK)^{N_2+M'_2-n_2-m_2}. \tag{A.23}
\end{aligned}$$

Konzentrieren wir uns auf das Integral. Wir führen Polarkoordinaten ein, integrieren über β , substituieren $x = |K|^2 = \left(\frac{1}{2}q\right)^2$, werten das Kronecker-Symbol aus und verwenden $p = M_1 + M_2 + N'_1 + N'_2 - n_1 - m_1 - n_2 - m_2$ sowie den Drehimpuls $L^{(l)} = N_1^{(l)} - M_1^{(l)} + N_2^{(l)} - M_2^{(l)}$

$$\begin{aligned}
& \int d\mathbf{q} \frac{1}{q} e^{-2|K|^2} (iK^*)^{N'_1+M_1-n_1-m_1} (iK)^{N_1+M'_1-n_1-m_1} \times \\
&\quad \times (-iK^*)^{N'_2+M_2-n_2-m_2} (-iK)^{N_2+M'_2-n_2-m_2} \\
&= \int_0^\infty dq q \int_0^{2\pi} d\beta \frac{1}{q} e^{-2|K|} (i|K|)^{N'_1+M_1+N_1+M'_1+N'_2+M_2+N_2+M'_2-2n_1-2m_1-2n_2-2m_2} \times \\
&\quad \times (-1)^{N'_2+M_2+N_2+M'_2-2n_2-2m_2} e^{i\beta(-N'_1-M_1+N_1+M'_1-N'_2-M_2+N_2+M'_2)} \\
&= \int_0^\infty dq e^{-2|K|^2} (i|K|)^{N'_1+M_1+N_1+M'_1+N'_2+M_2+N_2+M'_2-2n_1-2m_1-2n_2-2m_2} \times \\
&\quad \times (-1)^{N'_2+M_2+N_2+M'_2} \int_0^{2\pi} d\beta e^{i\beta(-N'_1-M_1+N_1+M'_1-N'_2-M_2+N_2+M'_2)} \\
&= \int_0^\infty dq e^{-2|K|^2} (i|K|)^{N'_1+M_1+N_1+M'_1+N'_2+M_2+N_2+M'_2-2n_1-2m_1-2n_2-2m_2} \times \\
&\quad \times (-1)^{N'_2+M_2-N_2-M'_2} 2\pi \delta_{N_1+N_2+M'_1+M'_2, N'_1+N'_2+M_1+M_2}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= 2\pi \delta_{N_1+N_2+M'_1+M'_2, N'_1+N'_2+M_1+M_2} \int_0^\infty dq e^{-2|K|^2} (i|K|)^{2N'_1+2M_1+2N_1+2M'_1-2n_1-2m_1-2n_2-2m_2} \times \\
&\quad \times (-1)^{N'_2+M_2-N_2-M'_2} \\
&= 2\pi \delta_{N_1+N_2+M'_1+M'_2, N'_1+N'_2+M_1+M_2} (-1)^{M'_1-M_1+N_1-N'_1} (-1)^p \int_0^\infty dq e^{-2|K|^2} |K|^{2p} \\
&= 2\pi \delta_{L,L'} (-1)^{M'_1-M_1+N_1-N'_1} (-1)^p \frac{1}{l} \int_0^\infty dx e^{-2x} x^{p-\frac{1}{2}} \\
&= 2\pi \delta_{L,L'} (-1)^{M'_1-M_1+N_1-N'_1} (-1)^p \frac{1}{l} \left(\frac{1}{2}\right)^{p+\frac{1}{2}} \Gamma\left(p+\frac{1}{2}\right) \quad (^{50} \text{ S. 364, 3.381/4}) \\
&= \frac{\sqrt{2}\pi}{l} \delta_{L,L'} (-1)^{M'_1-M_1+N_1-N'_1} \left(-\frac{1}{2}\right)^p \Gamma\left(p+\frac{1}{2}\right). \tag{A.24}
\end{aligned}$$

Bevor wir das Endergebnis angeben, fassen wir alle Faktoren aus (A.23) und (A.24) zusammen:

$$\frac{C}{2\pi} \times \frac{\sqrt{2}\pi}{l} = \frac{C}{\sqrt{2}l} = \frac{1}{2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 a_0} \frac{2a_0}{l\sqrt{2}} = \text{Ry} \frac{a_0}{l/\sqrt{2}}. \tag{A.25}$$

Damit lautet das Ergebnis für die Coulomb-Matrixelemente

$$\begin{aligned}
&^{(2)}\langle N'_2, M'_2 | ^{(1)}\langle N'_1, M'_1 | W | N_1, M_1 \rangle ^{(1)} | N_2, M_2 \rangle ^{(2)} \\
&= \text{Ry} \frac{a_0}{l/\sqrt{2}} \frac{\delta_{L,L'} (-1)^{M'_1-M_1+N_1-N'_1}}{\sqrt{N'_1!N_1!M'_2!M_2!N'_2!N_2!M'_2!M_2!}} \times \\
&\quad \times \sum_{n_1=0}^{\min(N_1, N'_1)} n_1! \binom{N'_1}{n_1} \binom{N_1}{n_1} \sum_{m_1=0}^{\min(M_1, M'_1)} m_1! \binom{M'_1}{m_1} \binom{M_1}{m_1} \times \\
&\quad \times \sum_{n_2=0}^{\min(N_2, N'_2)} n_2! \binom{N'_2}{n_2} \binom{N_2}{n_2} \sum_{m_2=0}^{\min(M_2, M'_2)} m_2! \binom{M'_2}{m_2} \binom{M_2}{m_2} \left(-\frac{1}{2}\right)^p \Gamma\left(p+\frac{1}{2}\right). \tag{A.26}
\end{aligned}$$

A.4 Numerisch stabile Implementierung der Coulomb-Matrixelemente

Der Betrag der Matrixelemente ist unter anderem vom Überlapp der beteiligten Wellenfunktionen maßgeblich abhängig. Wegen maximalen Überlapps und Lokalisierung ist $^{(2)}\langle 0,0 | ^{(1)}\langle 0,0 | W | 0,0 \rangle ^{(1)} | 0,0 \rangle ^{(2)}$ betragsmäßig am größten und damit eine obere Schranke für die Beträge aller anderen Matrixelemente. Damit sind wir mit dem Problem konfrontiert, daß für höhere Quantenzahlen die Beträge zwar abnehmen, aber gleichzeitig die Größe der Summanden mit wechselndem Vorzeichen aufgrund der Γ -Funktion faktoriell wächst, d.h. wir addieren zwei sehr große Zahlen mit unterschiedlichen Vorzeichen und interessieren uns für das Ergebnis, das extrem klein

ist im Vergleich zu den Summanden. Eine solche Situation erfordert eine sorgfältige numerische Implementierung.

Zunächst schreiben wir (A.26)

$$\begin{aligned} \text{CME} &:= {}^{(2)}\langle N'_2, M'_2 | {}^{(1)}\langle N'_1, M'_1 | W | N_1, M_1 \rangle^{(1)} | N_2, M_2 \rangle^{(2)} \\ &= U \sum_{p=0}^{4M} f(p) \left(-\frac{1}{2}\right)^p \Gamma\left(p + \frac{1}{2}\right) \end{aligned} \quad (\text{A.27})$$

mit Hilfe einiger nützlicher Abkürzungen

$$M = 4 \max(N_1, M_1, N_2, M_2, N'_1, M'_1, N'_2, M'_2), \quad (\text{A.28})$$

$$U = \text{Ry} \frac{a_0}{l/\sqrt{2}} \delta_{L,L'} (-1)^{M'_1 - M_1 + N_1 - N'_1}, \quad (\text{A.29})$$

$$\begin{aligned} f(p) = \sum_{M_1 + M_2 + N'_1 + N'_2 - n_1 - m_1 - n_2 - m_2 = p} & g(N'_1, n_1) g(N_1, n_1) g(M'_1, m_1) g(M_1, m_1) \times \\ & \times g(N'_2, n_2) g(N_2, n_2) g(M'_2, m_2) g(M_2, m_2), \end{aligned} \quad (\text{A.30})$$

und

$$g(N, n) = \frac{1}{(N - n)!} \sqrt{\frac{N!}{n!}}. \quad (\text{A.31})$$

Während die Funktionen $g(N, n)$ Zahlen vernünftiger Größenordnung liefern, müssen wir uns speziell um die Γ -Funktion kümmern, für die wir die Produktdarstellung (siehe Abramowitz & Stegun (1972¹)) verwenden. Außerdem sammeln wir alle positiven und negativen Beiträge der Summe separat.

$$\begin{aligned} \text{CME} &= U \left\{ \sum_{p \text{ gerade}} f(p) \left(\frac{1}{2}\right)^p \Gamma\left(p + \frac{1}{2}\right) - \sum_{p \text{ ungerade}} f(p) \left(\frac{1}{2}\right)^p \Gamma\left(p + \frac{1}{2}\right) \right\} \\ &= U \sqrt{\pi} \left\{ \sum_{p \text{ gerade}} f(p) \left(\frac{1}{2}\right)^p \frac{(2p-1)!!}{2^p} - \sum_{p \text{ ungerade}} f(p) \left(\frac{1}{2}\right)^p \frac{(2p-1)!!}{2^p} \right\}. \end{aligned} \quad (\text{A.32})$$

Um die numerische Stabilität weiter zu verbessern, führen wir Umformungen durch, die sicherstellen, daß nur Zahlen vergleichbarer Größe multipliziert bzw. dividiert werden.

$$\begin{aligned} \text{CME} &= U \sqrt{\pi} \left\{ \left(\dots \left(\left(f(4M) \frac{(8M-1)(8M-3)}{16} + f(4M-2) \right) \times \right. \right. \right. \\ &\quad \times \left. \left. \frac{(8M-5)(8M-7)}{16} + \dots + f(4) \right) \frac{7 \cdot 5}{16} + f(2) \right) \frac{3 \cdot 1}{16} + f(0) \right\} \\ &\quad - \frac{U}{4} \sqrt{\pi} \left\{ \left(\dots \left(\left(f(4M-1) \frac{(8M-3)(8M-5)}{16} + f(4M-3) \right) \times \right. \right. \right. \\ &\quad \times \left. \left. \frac{(8M-5)(8M-7)}{16} + \dots + f(5) \right) \frac{9 \cdot 7}{16} + f(3) \right) \frac{5 \cdot 3}{16} + f(0) \right\}. \end{aligned} \quad (\text{A.33})$$

Dabei wird der Term $a(p-1) = (a(p) + f(p))(2p-1)(2p-3)/16$ folgendermaßen berechnet: Da $a(p)$ groß und der fraktionale Anteil wichtig ist, speichern wir den ganzzahligen $[a(p)]_i$ und den fraktionalen Anteil getrennt $[a(p)]_n$. $f(p)$ ist nicht zu groß, so daß es mit ausreichender Genauigkeit vorliegt. Der Faktor $(2p-1)(2p-3)/16$ hat maximal vier Nachkommastellen. Somit können wir die Zwischenergebnisse $x = ([a(p)]_i(2p-1)(2p-3))/16$ und $y = ([a(p)]_n + f(p))(2p-1)(2p-3)/16$ genau berechnen. Der ganzzahlige Anteil von $[a(p-1)]_i = \text{floor}(x) + \text{floor}(y)$ und der nicht-ganzzahlige Anteil $[a(p-1)]_n = (y - \text{floor}(y)) + (x - \text{floor}(x))$ werden separat berechnet. Bei dieser Art der Berechnung kann zwar der Fall $2 > [a(p)]_n > 1$ auftreten, was aber nur zu einem vernachlässigbaren Fehler von einer Stelle führt.

Zum Schluß sei noch erwähnt, daß zwar mit *Maple*¹⁰³ oder *Mathematica*¹⁰⁵ eine direkte Berechnung gemäß Formel (A.26) möglich ist, da diese Programme mit einer beliebigen Zahl von Nachkommastellen operieren können. Allerdings ist diese Art der Generierung der Matrixelemente aufgrund des immensen Zeitaufwands nicht praktikabel. Für die vorliegende Arbeit wurde deshalb die Berechnung der Matrixelemente unter Verwendung des obigen Algorithmus und mit Hilfe der C++-Bibliothek *NTL*¹¹⁶, die ebenfalls eine beliebige Genauigkeit für Fließkommazahlen erlaubt, optimiert.

 ANHANG B

Hartree-Potential

Die DFT erfordert die Berechnung des Hartree-Potentials bei gegebener Dichte $n(\mathbf{r})$

$$V_H(\mathbf{r}) = \int d\mathbf{r}' W(\mathbf{r}, \mathbf{r}') n(\mathbf{r}'). \quad (\text{B.1})$$

Dabei ist $W(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ die in Gleichung (A.3) definierte Coulomb-Wechselwirkung.

Die Dichte $n(\mathbf{r})$ einer Eigenfunktion des Hamilton-Operators (1.27) bzw. (1.34) kann mit Hilfe von FD-Wellenfunktionen $\alpha_{NM}(\mathbf{r})$ gemäß Gleichungen (1.73), (1.74) dargestellt werden in der Form

$$n(\mathbf{r}) = \sum_{N'M'NM} \gamma_{N'M',NM} \alpha_{N'M'}^*(\mathbf{r}) \alpha_{NM}(\mathbf{r}). \quad (\text{B.2})$$

Falls wir zusätzlich davon ausgehen, daß die Vielteilchen-Wellenfunktion eine Eigenfunktion des Gesamtdrehimpulsoperators ist, sind die Koeffizienten $\gamma_{N'M',NM}$ reell und es gilt darüber hinaus

$$N' - M' = N - M. \quad (\text{B.3})$$

In Kombination mit der Fourier-Darstellung der Coulomb-Wechselwirkung (A.9) folgt für das Hartree-Potential

$$V_H(\mathbf{r}) = \frac{C}{2\pi} \sum_{N'M'NM} \gamma_{N'M',NM} \int d\mathbf{q} \frac{1}{q} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} \int d\mathbf{r}' \alpha_{N'M'}^*(\mathbf{r}') e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}'} \alpha_{NM}(\mathbf{r}). \quad (\text{B.4})$$

Wir setzen (A.22) mit $K = -\frac{l}{2}q \exp(i\beta)$ in die Summanden der obigen Gleichung ein und erhalten mit $\mathbf{r} = (r \cos \varphi, r \sin \varphi)$ unter Ausnutzung der Drehimpulserhaltung (B.3)

$$\begin{aligned}
& \int d\mathbf{q} \frac{1}{q} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} \int d\mathbf{r}' \alpha_{N'M'}^*(\mathbf{r}') e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}'} \alpha_{NM}(\mathbf{r}) \\
&= \int d\mathbf{q} \frac{1}{q} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} \frac{e^{-l^2 q^2 / 4}}{\sqrt{N'! N! M'! M!}} \sum_{n=0}^{\min(N, N')} n! \binom{N'}{n} \binom{N}{n} \sum_{m=0}^{\min(M, M')} m! \binom{M'}{m} \binom{M}{m} \times \\
&\quad \times \left(-i \frac{ql}{2} e^{-i\beta} \right)^{N'+M-n-m} \left(-i \frac{ql}{2} e^{i\beta} \right)^{N+M'-n-m} \\
&= \frac{1}{\sqrt{N'! N! M'! M!}} \sum_{n=0}^{\min(N, N')} n! \binom{N'}{n} \binom{N}{n} \sum_{m=0}^{\min(M, M')} m! \binom{M'}{m} \binom{M}{m} \times \\
&\quad \times \int d\mathbf{q} q \frac{1}{q} e^{-l^2 q^2 / 4} \left(-\frac{il}{2} q \right)^{2(N'+M-n-m)} \int_0^{2\pi} d\beta e^{iqr \cos(\beta - \varphi)}. \tag{B.5}
\end{aligned}$$

Analog zu Rechnung (A.8) liefert die Integration über den Winkel

$$\int_0^{2\pi} d\beta e^{iqr \cos(\beta - \varphi)} = 2\pi J_0(qr). \tag{B.6}$$

Damit vereinfacht sich (B.5) zu

$$\begin{aligned}
& \int d\mathbf{q} \frac{1}{q} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} \int d\mathbf{r}' \alpha_{N'M'}^*(\mathbf{r}') e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}'} \alpha_{NM}(\mathbf{r}) \\
&= \frac{2\pi}{\sqrt{N'! N! M'! M!}} \sum_{n=0}^{\min(N, N')} n! \binom{N'}{n} \binom{N}{n} \sum_{m=0}^{\min(M, M')} m! \binom{M'}{m} \binom{M}{m} (-1)^{N'+M-n-m} \times \\
&\quad \times \int d\mathbf{q} e^{-l^2 q^2 / 4} \left(\frac{l}{2} q \right)^{2(N'+M-n-m)} J_0(qr). \tag{B.7}
\end{aligned}$$

Für die Integration über q substituieren wir $x = lq/2$ und erhalten mit Gradshteyn & Ryzhik (1980⁵⁰) 6.631/1

$$\begin{aligned}
& \int d\mathbf{q} e^{-l^2 q^2 / 4} \left(\frac{l}{2} q \right)^{2(N'+M-n-m)} J_0(qr) \\
&= \frac{2}{l} \int dx e^{-x^2} x^{2(N'+M-n-m)} J_0(2r/l) \\
&= \frac{1}{r} \Gamma(N' + M - n - m + 1/2) e^{-(r/l)^2 / 2} M_{N'+M-n-m, 0}((r/l)^2) \tag{B.8}
\end{aligned}$$

mit den Whittaker-Funktionen $M_{\alpha, \beta}(x)$. Eingesetzt in (B.7) ergibt sich

$$\begin{aligned}
& \int d\mathbf{q} \frac{1}{q} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} \int d\mathbf{r}' \alpha_{N'M'}^*(\mathbf{r}') e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}'} \alpha_{NM}(\mathbf{r}) \\
&= \frac{2\pi}{r} \frac{e^{-(r/l)^2 / 2}}{\sqrt{N'! N! M'! M!}} \sum_{n=0}^{\min(N, N')} n! \binom{N'}{n} \binom{N}{n} \sum_{m=0}^{\min(M, M')} m! \binom{M'}{m} \binom{M}{m} \times \\
&\quad \times (-1)^{N'+M-n-m} \Gamma(N' + M - n - m + 1/2) M_{N'+M-n-m, 0}((r/l)^2). \tag{B.9}
\end{aligned}$$

Dann lautet das Endergebnis für das Hartree-Potential

$$\begin{aligned}
 V_H(r) = & \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 r} e^{-(r/l)^2/2} \sum_{N'M'NM} \gamma_{N'M',NM} \frac{1}{\sqrt{N'!N!M'!M!}} \times \\
 & \times \sum_{n=0}^{\min(N,N')} n! \binom{N'}{n} \binom{N}{n} \sum_{m=0}^{\min(M,M')} m! \binom{M'}{m} \binom{M}{m} \times \\
 & \times (-1)^{N'+M-n-m} \Gamma(N' + M - n - m + 1/2) M_{N'+M-n-m,0}((r/l)^2). \quad (B.10)
 \end{aligned}$$

 ANHANG C

Dichten von Multipllettzuständen

Wir betrachten den Hamilton-Operator von N Elektronen im Magnetfeld in Ortsdarstellung

$$\hat{H} = \sum_{j=1}^N \left[\frac{1}{2m} (\mathbf{p}_j + e\mathbf{A}(\mathbf{r}_j))^2 + V(\mathbf{r}_j) \right] + \frac{1}{2} \sum_{j,k=1}^N \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k|}. \quad (\text{C.1})$$

Die Operatoren für den Gesamtspin $\hat{\mathbf{S}}^2$ und den Gesamtspin in z -Richtung $\hat{S}_z$ sowie die Leiteroperatoren des Gesamtspins $\hat{S}_{\pm} = \hat{S}_x \pm i\hat{S}_y$ kommutieren offensichtlich mit dem Hamiltonian $\hat{H}$.

Sei ein Eigenzustand $|\Psi_{S,S_z}\rangle$ von $\hat{H}$ mit Gesamtspin S , Gesamtspin S_z in z -Richtung und Energie E gegeben. Dann können durch Anwendung der Leiteroperatoren die $2S$ weiteren Zustände des Multipletts erzeugt werden

$$\hat{S}_{\pm} |\Psi_{S,S_z}\rangle = \hbar \sqrt{(S \mp S_z)(S \pm S_z + 1)} |\Psi_{S,S_z \pm 1}\rangle. \quad (\text{C.2})$$

Somit liegen insgesamt $2S + 1$ Zustände mit Gesamtdrehimpuls S und Gesamtdrehimpuls in z -Richtung $S_z = -S, -S + 1, \dots, S$ vor. Die generierten Zustände sind ebenfalls Eigenzustände von $\hat{H}$ mit der Eigenenergie E , da

$$\hat{H} |\Psi_{S,S_z \pm 1}\rangle = \frac{1}{\hbar \sqrt{(S \mp S_z)(S \pm S_z + 1)}} \hat{H} \hat{S}_{\pm} |\Psi_{S,S_z}\rangle \quad (\text{C.3})$$

$$= \frac{1}{\hbar \sqrt{(S \mp S_z)(S \pm S_z + 1)}} \hat{S}_{\pm} \hat{H} |\Psi_{S,S_z}\rangle \quad (\text{C.4})$$

$$= E \frac{1}{\hbar \sqrt{(S \mp S_z)(S \pm S_z + 1)}} \hat{S}_{\pm} |\Psi_{S,S_z}\rangle \quad (\text{C.5})$$

$$= E |\Psi_{S,S_z \pm 1}\rangle \quad (\text{C.6})$$

gilt.

Jetzt zeigen wir, daß die Dichten der Zustände des Multipletts identisch sind. Dazu betrachten wir den Dichteoperator

$$\hat{n}(\mathbf{r}) = \sum_{j=1}^N \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j). \quad (\text{C.7})$$

Offensichtlich kommutiert $\hat{n}(\mathbf{r})$ mit allen Spinoperatoren. Somit erhalten wir

$$\begin{aligned} \langle \Psi_{S, S_z \pm 1} | \hat{n}(\mathbf{r}) | \Psi_{S, S_z \pm 1} \rangle &= \frac{1}{\hbar^2 (S \mp S_z)(S \pm S_z + 1)} \langle \Psi_{S, S_z} | \hat{S}_{\mp} \hat{n}(\mathbf{r}) \hat{S}_{\pm} | \Psi_{S, S_z} \rangle \\ &= \frac{1}{\hbar^2 (S^2 + S - S_z^2 \mp S_z)} \langle \Psi_{S, S_z} | \hat{n}(\mathbf{r}) \hat{S}_{\mp} \hat{S}_{\pm} | \Psi_{S, S_z} \rangle \\ &= \frac{1}{\hbar^2 (S^2 + S - S_z^2 \mp S_z)} \langle \Psi_{S, S_z} | \hat{n}(\mathbf{r}) (\hat{S}^2 - S_z^2 \mp \hbar S_z) | \Psi_{S, S_z} \rangle \\ &= \langle \Psi_{S, S_z} | \hat{n}(\mathbf{r}) | \Psi_{S, S_z} \rangle. \end{aligned} \quad (\text{C.8})$$

Analoges gilt für die paramagnetische Stromdichte, da auch der paramagnetische Stromdichteoperator

$$\hat{j}_p(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{2mi} \sum_{j=1}^N \left[\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) \vec{\nabla}_{\mathbf{r}_j} - \overleftarrow{\nabla}_{\mathbf{r}_j} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) \right] \quad (\text{C.9})$$

mit allen Spinoperatoren vertauscht.*

Die Aussagen über die Dichten und Stromdichten der $2S + 1$ Zustände des Multipletts bleiben auch bei Berücksichtigung der Zeeman-Energie richtig. Sie bewirkt nur eine Aufspaltung der Eigenenergien des Multipletts.

Ein alternativer Beweisansatz für die obige Behauptung könnte auch mit den von Pauncz (1979¹²³) beschriebenen gruppentheoretischen Methoden zur Separation von Orts- und Spinanteil der Vielteilchen-Wellenfunktion geführt werden.

*Ein Pfeil nach rechts (links) auf dem Nabla-Operator bedeutet, daß die Ableitungen auf den ket-Zustand (bra-Zustand) wirken.

 ANHANG D

Eindeutigkeit der Austausch-Korrelations-Potentiale

Die Einteilchen-Wellenfunktionen $|\varphi_{j,\sigma}\rangle$ der KS-Slater-Determinante

$$|\Psi\rangle = |\varphi_{1,\downarrow}\rangle \dots |\varphi_{N_{\downarrow},\downarrow}\rangle |\varphi_{1,\uparrow}\rangle \dots |\varphi_{N_{\uparrow},\uparrow}\rangle \quad (\text{D.1})$$

seien Eigenfunktionen des KS-Hamilton-Operators (2.69) bei $B = 0$

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{KS}} = & -\frac{\hbar^2}{2m^*} \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} \right] + \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 r^2 + \frac{\partial}{\partial \varphi} \frac{\hbar e}{i m^*} \frac{A_{\text{XC},\varphi}(r)}{r} \\ & + V_{\text{H}}(r) + \sum_{\sigma} V_{\text{XC}\sigma}(r) |\sigma\rangle \langle \sigma|. \end{aligned} \quad (\text{D.2})$$

mit dem Potentialtupel $(\hat{V}_{\text{XC}\sigma}, \hat{A}_{\text{XC},\varphi})$

$$\hat{H}_{\text{KS}} |\varphi_{j,\sigma}\rangle = \varepsilon_{j,\sigma} |\varphi_{j,\sigma}\rangle. \quad (\text{D.3})$$

Aufgrund der Axialsymmetrie sind die Zustände $|\varphi_{j,\sigma}\rangle$ auch Eigenfunktionen des Drehimpulsoperators $\hat{l} |\varphi_{j,\sigma}\rangle = l_{j,\sigma} |\varphi_{j,\sigma}\rangle$.

Wir nehmen jetzt an, es existiere ein KS-Hamilton-Operator $\hat{H}'_{\text{KS}}$ mit dem Potentialtupel $(\hat{V}'_{\text{XC}\sigma}, \hat{A}'_{\text{XC},\varphi}) \neq (\hat{V}_{\text{XC}\sigma} + c_{\sigma}, \hat{A}_{\text{XC},\varphi})$, so daß die KS-Einteilchen-Wellenfunktionen auch Eigenfunktionen von $\hat{H}'_{\text{KS}}$ sind

$$\hat{H}'_{\text{KS}} |\varphi_{j,\sigma}\rangle = \varepsilon'_{j,\sigma} |\varphi_{j,\sigma}\rangle. \quad (\text{D.4})$$

Dann folgt für die Potentialdifferenzen $\Delta V_{\text{XC}\sigma}(r) = V'_{\text{XC}\sigma}(r) - V_{\text{XC}\sigma}(r)$ und $\Delta A_{\text{XC},\varphi}(r) = A'_{\text{XC},\varphi}(r) - A_{\text{XC},\varphi}(r)$ aus

$$(\hat{H}'_{\text{KS}} - \hat{H}_{\text{KS}}) |\varphi_{j,\sigma}\rangle = (\varepsilon'_{j,\sigma} - \varepsilon_{j,\sigma}) |\varphi_{j,\sigma}\rangle. \quad (\text{D.5})$$

die Bedingung

$$\Delta V_{\text{XC}\sigma}(r) + l_{j,\sigma} \frac{\hbar e}{m^*} \frac{\Delta A_{\text{XC},\varphi}(r)}{r} - \varepsilon'_{j,\sigma} + \varepsilon_{j,\sigma} = 0. \quad (\text{D.6})$$

Die Gleichung (D.6) muß für alle Wellenfunktionen $|\varphi_{j,\sigma}\rangle$ erfüllt sein.

Sind in einer Spinrichtung mindestens zwei Zustände mit unterschiedlichen Drehimpulsen $l_{j,\sigma} \neq l_{j',\sigma}$ besetzt, so folgt aus

$$l_{j'\sigma} \left(\Delta V_{XC\sigma}(r) + l_{j,\sigma} \frac{\hbar e}{m^*} \frac{\Delta A_{XC,\varphi}(r)}{r} - \varepsilon'_{j,\sigma} + \varepsilon_{j,\sigma} \right) - l_{j\sigma} \left(\Delta V_{XC\sigma}(r) + l_{j',\sigma} \frac{\hbar e}{m^*} \frac{\Delta A_{XC,\varphi}(r)}{r} - \varepsilon'_{j',\sigma} + \varepsilon_{j',\sigma} \right) = 0, \quad (D.7)$$

daß sich die skalaren Potentiale nur um eine Konstante unterscheiden

$$\Delta V_{XC\sigma}(r) = \text{const.} \quad (D.8)$$

Daraus erhalten wir sofort

$$\Delta A_{XC,\varphi}(r) = r \text{const}'. \quad (D.9)$$

Aus der Forderung endlicher XC-Vektorpotentiale bei $B = 0$ läßt sich $\Delta A_{XC,\varphi}(r) = 0$ ableiten. Falls die Zustände der anderen Spinrichtung $-\sigma$ besetzt sind, erhalten wir auch

$$\Delta V_{XC-\sigma}(r) = \text{const.} \quad (D.10)$$

Damit steht das Ergebnis im Widerspruch zur Annahme $(\hat{V}'_{XC\sigma}, \hat{A}'_{XC,\varphi}) \neq (\hat{V}_{XC\sigma} + c_\sigma, \hat{A}_{XC,\varphi})$ und die Eindeutigkeit der XC-Potentiale ist bewiesen.

Die Annahme, daß in einer Spinrichtung mindestens zwei Zustände mit unterschiedlichen Drehimpulsen $l_{j,\sigma} \neq l_{j',\sigma}$ besetzt sind, trifft für alle in der vorliegenden Arbeit betrachteten Konfigurationen zu. Die restlichen Fälle für $N \geq 2$ führen zu mehr oder weniger pathologischen Situationen:

- Gilt $N_\uparrow = N_\downarrow = 1$, kann die Eindeutigkeit außer für den Fall $l_{1\uparrow} = l_{1\downarrow} = 0$ (d.h. konventionelle DFT ohne paramagnetische Stromdichte und damit auch ohne A_{XC}) nicht gezeigt werden.
- Gilt $N \geq 2$, $l_{1\downarrow} = \dots = l_{N\downarrow}$ und $l_{1\uparrow} = \dots = l_{N\uparrow}$, ist die Eindeutigkeit der XC-Potentiale ebenfalls nicht gewährleistet. Eine solche Konfiguration sollte aber insbesondere für größere Teilchenzahlen nicht als GZ auftreten.

Im allgemeinen sind die XC-Potentiale durch die Gleichung (D.6) überbestimmt. Damit ist weniger die Eindeutigkeit als vielmehr die Existenz eines passenden XC-Potentialtupels problematisch.

Abbildungsverzeichnis

E.1	GaAs/Al _x Ga _{1-x} As-Heterostruktur	9
E.2	Messung des Additionsspektrums eines Quantenpunkts (Tarucha et al., 1996)	11
1.1	Radialfunktionen und Spektrum des harmonischen Oszillators im Magnetfeld (FD-Zustände)	19
2.1	Zusammenhang zwischen externen Potentialen, Grundzustandswellenfunktionen und -dichten für den Fall entarteter Grundzustände	31
2.2	Relative Abweichungen der Parametrisierungen der XC-Energien	43
2.3	Interpolation der Austausch-Korrelations-Energie für verschiedene Dichteparameter r_s	45
2.4	Vergleich der glatten Interpolationsformeln für die Austausch-Korrelations-Energie im Regime $f < 1$ mit kubischer Spline-Interpolation nach Price & Das Sarma (1996)	47
3.1	Elektronische Konfiguration der einfachsten QHDs	52
3.2	FD-Spektrum mit überhöhter Zeeman-Energie	53
3.3	Aufenthaltswahrscheinlichkeiten	54
3.4	GZe entlang der $\nu = 2$ -Linie	56
3.5	Entstehung der $\nu = 2$ -Linie	57
3.6	GZ-Konfigurationen und Amplituden entlang der $\nu = 2$ -Linie	58
3.7	Zusammenbruch einer unpolarisierten GZ-Phase	60
3.8	HF-GZ-Phasendiagramme für $\hbar\omega_0 = 6\text{meV}$ und $E_z/B = 0.0254\text{meV/T}$ ($g = -0.44$)	62
3.9	SDFT/LSDA-GZ-Phasendiagramme für $\hbar\omega_0 = 1\text{meV}$ und $E_z/B = 0.0254\text{meV/T}$ ($g = -0.44$)	64
3.10	SDFT/LSDA-GZ-Phasendiagramme für $\hbar\omega_0 = 1\text{meV}$ und $E_z/B = 0.0508\text{meV/T}$ ($g = -0.88$)	65
3.11	Experimentelle Ergebnisse	67
4.1	Konzept für die ED mit Gesamtspin als guter Quantenzahl	74
4.2	Konvergenztest für ein System mit acht Elektronen	76
4.3	Effektives Einteilchen-Bild für verschiedene Konfigurationen eines Systems mit acht Elektronen	77
4.4	Rechnung für ein System mit den Parametern $N = 6$, $\hbar\omega_0 = 3\text{meV}$, $S = 0$ und $L = -17$ bis 0	78

4.5	Rechnung für ein System mit den Parametern $N = 4, N = 5, N = 6$ und einem Confinement-Potential von $\hbar\omega_0 = 3\text{meV}$	79
4.6	Konzept für die ED mit CM-Bewegung und Gesamtspin als gute Quantenzahlen	82
4.7	Spektrum eines Systems mit den Parametern $N = 4, \hbar\omega_0 = 3\text{meV}$ und $g = 0$ in den zwei untersten LL.	84
5.1	Testrechnung für ein unpolarisiertes System	93
5.2	Testrechnung für ein polarisiertes System mit paramagnetischer Stromdichte	97
5.3	Analytische Ergebnisse des Zweielektronen-Systems ($S = 0$)	99
5.4	Analytische Ergebnisse des Zweielektronen-Systems ($S = 1$)	102
6.1	Konvergenztest für ED und Vergleich mit DFT für ein unpolarisiertes System	108
6.2	Inversion der KS-Gleichungen für ein unpolarisiertes System	109
6.3	Extrahierte XC-Energiedichten aus unpolarisierten Systemen	111
6.4	Vergleich ED versus DFT für ein vollständig polarisiertes System	113
6.5	Inversion der KS-Gleichungen für ein vollständig polarisiertes System	115
6.6	Extrahierte XC-Energiedichten aus vollständig polarisierten Systemen	116
6.7	Teilweise polarisierte Systeme mit vier und sechs Elektronen	118
6.8	XC-Energiedichten aus teilweise polarisierten Systemen ($\xi = 0.1$)	119
6.9	XC-Energiedichten aus teilweise polarisierten Systemen	120
6.10	GZ-Dichten und paramagnetische Stromdichten für $\nu = 1$ -Droplets.	121
6.11	XC-Potentiale und relative Fehler in den Dichten für das $\nu = 1$ -Droplet mit sechs Elektronen.	122
6.12	XC-Potentiale und relative Fehler in den Dichten für das $\nu = 1$ -Droplet mit zwei Elektronen.	124
6.13	XC-Potentiale des $\nu = 1$ -Droplets mit zwei Elektronen für verschiedene Potentialstärken.	125
6.14	GZ-Dichten und paramagnetische Stromdichten für $\nu = 2$ -Droplets.	126
6.15	XC-Potentiale und relative Fehler in den Dichten für das $\nu = 2$ -Droplet mit vier Elektronen.	127
6.16	Inversion der KS-Gleichungen für ein $\nu = 2$ -Droplet mit vier Elektronen	129
6.17	XC-Potentiale des $\nu = 2$ -Droplets mit vier Elektronen für verschiedene Potentialstärken.	130
6.18	XC-Energiedichten als Funktion von Dichteparameter und Vortizität	131

Literaturverzeichnis

- ¹ M. Abramowitz & I. A. Stegun. *Handbook of mathematical functions*. Dover Publications, New York, 1972.
- ² C.-O. Almbladh & A. C. Pedroza. *Density-functional exchange-correlation potentials and orbital eigenvalues for light atoms*. Phys. Rev. A **29**, 2322 (1984).
- ³ F. Aryasetiawan & M. J. Stott. *Effective potentials in density-functional theory*. Phys. Rev. B **88**, 2974 (1988).
- ⁴ R. C. Ashoori. *Electrons in artificial atoms*. Nature **379**, 413 (1996).
- ⁵ R. C. Ashoori, H. L. Störmer, J. S. Weiner, K. W. Baldwin L. N. Pfeiffer & K. W. West. *N-electron ground state energies of a quantum dot in magnetic field*. Phys. Rev. Lett. **71**, 613 (1993).
- ⁶ R. C. Ashoori, H. L. Störmer, J. S. Weiner, L. N. Pfeiffer, S. J. Pearton, K. W. Baldwin & K. W. West. *Single-electron capacitance spectroscopy of discrete quantum levels*. Phys. Rev. Lett. **68**, 3088 (1992).
- ⁷ C. Attacalite, S. Moroni, P. Gori-Giorgi & G. B. Bachelet. *Correlation energy and spin polarization in the 2D electron gas*. Phys. Rev. Lett. **88**, 256601 (2002).
- ⁸ D. G. Austing, S. Sasaki, S. Tarucha, S. M. Reimann, M. Koskinen & M. Manninen. *Ellipsoidal deformation of vertical quantum dots*. Phys. Rev. B **60**, 11514 (1999).
- ⁹ U. von Barth & L. Hedin. *A local exchange-correlation potential for the spin polarized case*. J. Phys. C **5**, 1629 (1972).
- ¹⁰ O. Betbeder-Matibet, M. Combescot & C. Tanguy. *Quasi-two-dimensional electron gas: exchange and correlation energies*. Phys. Rev. B **53**, 12929 (1996).
- ¹¹ R. H. Blick, D. Pfannkuche, R. J. Haug, K. von Klitzing & K. Eberl. *Formation of a coherent mode in a double quantum dot*. Phys. Rev. Lett. **80**, 4032 (1998).
- ¹² F. Bolton. *Wenig-Elektronen-Systeme in Quanten-Dots*. Dissertation, Universität Regensburg, 1994.
- ¹³ F. Bolton. *Fixed-phase quantum Monte Carlo method applied to interacting electrons in a quantum dot*. Phys. Rev. B **54**, 4780 (1996).
- ¹⁴ I. N. Bronstein & K. A. Semendjajew. *Taschenbuch der Mathematik*. Harri Deutsch, Thun u. Frankfurt/Main, 24. Auflage, 1989.

- ¹⁵ N. A. Bruce & P. A. Maksym. *Quantum states of interacting electrons in a real quantum dot*. Phys. Rev. B **61**, 4718 (2000).
- ¹⁶ J. M. Caillol, D. Levesque, J. J. Weis & J. P. Hansen. *A Monte Carlo study of the classical two-dimensional one-component plasma*. J. Stat. Phys. **28**, 325 (1982).
- ¹⁷ K. Capelle & E. K. U. Gross. *Spin-density functionals from current-density functional theory and vice versa: a road towards new approximations*. Phys. Rev. Lett. **78**, 1872 (1997).
- ¹⁸ K. Capelle & G. Vignale. *Nonuniqueness of the potentials in spin-density-functional theory*. Phys. Rev. Lett. **86**, 5546 (2001).
- ¹⁹ K. Capelle & G. Vignale. *Nonuniqueness and derivative discontinuities in density-functional theories for current-carrying and superconduction systems*. Phys. Rev. B **65**, 113106 (2002).
- ²⁰ T. Chakraborty. *Quantum dots*. Elsevier, Amsterdam, 1999.
- ²¹ T. Chakraborty & F. C. Zhang. *Role of reversed spins in the correlated ground state for the fractional quantum Hall effect*. Phys. Rev. B **29**, 7032 (1984).
- ²² C. de Chamon & X. G. Wen. *Sharp and smooth boundaries of quantum Hall liquids*. Phys. Rev. B **49**, 8227 (1994).
- ²³ A. M. Chang. *Non-gaussian distribution of Coulomb blockade peak heights in quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **76**, 1695 (1996).
- ²⁴ M. Ciorga, A. S. Sachrajda, P. Hawrylak, C. Gould, P. Zawadzki and Y. Feng & Z. Wasilewski. *Addition spectrum of a lateral dot from Coulomb and spin-blockade spectroscopy*. Phys. Rev. B **61**, R16315 (2000).
- ²⁵ M. Ciorga, A. S. Sachrajda, P. Hawrylak, C. Gould, P. Zawadzki, Y. Feng & Z. Wasilewski. *Readout of a single electron spin based quantum bit by current detection*. Physica E **11**, 35 (2001).
- ²⁶ M. Ciorga, A. Wensauer, M. Pioro-Ladrière, M. Korkusinski, J. Kyriakidis, A. S. Sachrajda & P. Hawrylak. *The collapse of the spin-singlet phase in quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **88**, 256804 (2002).
- ²⁷ C. Cohen-Tannoudji, B. Diu & F. Laloë. *Quantenmechanik. Teil 1*. Walter de Gruyter, Berlin, 1999.
- ²⁸ C. E. Creffield, W. Husler, J. H. Jefferson & S. Sarkar. *Interacting electrons in polygonal quantum dots*. Phys. Rev. **59**, 10719 (1999).
- ²⁹ T. Darnhofer. *Ferninfrarot-Response von Quanten-Dots mit Elektronen oder Löchern*. Dissertation, Universität Regensburg, 1996.
- ³⁰ C. G. Darwin. *The diamagnetism of the free electron*. Proc. Cambridge Phil. Soc. **27**, 86 (1931).
- ³¹ G. Diener. *Current-density-functional theory for a non-relativistic electron gas in a strong magnetic field*. J. Phys.: Condens. Matter **3**, 9417 (1991).
- ³² D. P. Divincenzo, D. Bacon, J. Kempe, G. Burkhard & K. B. Whaley. *Universal quantum computation with the exchange interaction*. Nature **408**, 339 (2000).
- ³³ R. M. Dreizler & E. K. U. Gross. *Density functional theory*. Springer, Berlin, 1990.

- ³⁴ R. Egger, W. Häusler, C. H. Mak & H. Grabert. *Crossover from Fermi liquid to Wigner molecule behavior in quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **92**, 3320 (1999).
- ³⁵ H. Eschrig & W. E. Pickett. *Density functional theory of magnetic systems revisited*. Sol. State Comm. **118**, 123 (2001).
- ³⁶ M. Eto. *Electronic structures of few electrons in a quantum dot under magnetic fields*. Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 3924 (1997).
- ³⁷ S. Fafard, K. Hinzer, S. Raymond, M. Dion, J. McCaffrey, Y. Feng & S. Charbonneau. *Red-emitting semiconductor quantum dot lasers*. Science **274**, 1350 (1996).
- ³⁸ G. Fano & F. Ortolani. *Interpolation formula for the energy of a two-dimensional electron gas in the lowest Landau level*. Phys. Rev. B **37**, 8179 (1988).
- ³⁹ M. Ferconi & G. Vignale. *Current-density-functional theory of quantum dots in a magnetic field*. Phys. Rev. B **50**, 14722 (1994).
- ⁴⁰ M. Ferconi & G. Vignale. *Density-functional theory of the phase diagram of maximum-density droplets in two-dimensional quantum dots in a magnetic field*. Phys. Rev. B **56**, 12108 (1997).
- ⁴¹ E. Fermi. *Eine statistische Methode zur Bestimmung einiger Eigenschaften des Atoms und ihre Anwendung auf die Theorie des periodischen Systems der Elemente*. Z. Physik **48**, 73 (1928).
- ⁴² A. V. Filinov, M. Bonitz & Yu. E. Lozovik. *Wigner crystallization in mesoscopic 2D electron systems*. Phys. Rev. Lett. **86**, 3851 (2001).
- ⁴³ C. Filippi, C. J. Umrigar & M. Taut. *Comparison of exact and approximate density functionals for an exactly soluble model*. J. Chem. Phys. **100**, 1290 (1994).
- ⁴⁴ V. Fock. *Bemerkung zur Quantelung des harmonischen Oszillators im Magnetfeld*. Z. Physik. **47**, 446 (1928).
- ⁴⁵ J. A. Folk. *Statistics and parametric correlations of Coulomb blockade peak fluctuations in quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **76**, 1699 (1996).
- ⁴⁶ P. Fulde. *Electron correlations in molecules and solids*. Springer, Berlin, 1991.
- ⁴⁷ M. Gell-Mann & K. A. Brueckner. *Correlation energy of an electron gas at high density*. Phys. Rev. **106**, 364 (1957).
- ⁴⁸ L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse & G. Le Roux. *Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices*. Appl. Phys. Lett. **47**, 1099 (1985).
- ⁴⁹ A. Görling. *Kohn-Sham potentials and wave functions from electron densities*. Phys. Rev. A **46**, 3753 (1992).
- ⁵⁰ I. S. Gradshteyn & I. M. Ryzhik. *Table of integrals, series and products*. Academic Press, New York, 1980.
- ⁵¹ O. Gunnarsson, M. Jonson & B. I. Lundqvist. *Descriptions of exchange and correlation effects in inhomogeneous electron systems*. Phys. Rev. B **20**, 3136 (1979).
- ⁵² O. Gunnarsson & B. I. Lundqvist. *Exchange and correlation in atoms, molecules, and solids by the spin-density formalism*. Phys. Rev. B **13**, 4274 (1976).

- ⁵³ A. Harju, S. Siljamäki & R. M. Nieminen. *Wave function for quantum-dot ground states beyond the maximum-density droplet*. Phys. Rev. B **60**, 1807 (1999).
- ⁵⁴ A. Harju, S. Siljamäki & R. M. Nieminen. *Wigner molecules in quantum dots: a quantum Monte Carlo study*. Phys. Rev. B **65**, 075309 (2002).
- ⁵⁵ A. Harju, V. A. Sverdlov, R. M. Nieminen & V. Halonen. *Many-body wave function for a quantum dot in a weak magnetic field*. Phys. Rev. B **59**, 5622 (1999).
- ⁵⁶ P. Hawrylak. *Far infrared absorption by screened D-states in quantum wells in a strong magnetic field*. Sol. State Commun. **88**, 475 (1993).
- ⁵⁷ P. Hawrylak. *Single-electron capacitance spectroscopy of few-electron artificial atoms in a magnetic field: theory and experiment*. Phys. Rev. Lett. **71**, 3347 (1993).
- ⁵⁸ P. Hawrylak. *Artificial impurity in interacting electron droplets in a strong magnetic field*. Phys. Rev. B **51**, 17708 (1995).
- ⁵⁹ P. Hawrylak, C. Gould, A. S. Sachrajda, Y. Feng & Z. Wasilewski. *Collapse of the Zeeman gap in quantum dots due to electronic correlations*. Phys. Rev. B **59**, 2801 (1999).
- ⁶⁰ P. Hawrylak & D. Pfannkuche. *Magnetoluminescence from correlated electrons in quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **70**, 485 (1993).
- ⁶¹ P. Hawrylak, A. Wojs & J. A. Brum. *Magnetoexcitons and correlated electrons in quantum dots in a magnetic field*. Phys. Rev. B **54**, 11397 (1996).
- ⁶² O. Heinonen, J. M. Kinaret & M. D. Johnson. *Ensemble density-functional approach to charge-spin textures in inhomogeneous quantum Hall systems*. Phys. Rev. B **59**, 8073 (1999).
- ⁶³ K. Hirose & N. S. Wingreen. *Spin-density-functional theory of circular and elliptical quantum dots*. Phys. Rev. B **59**, 4604 (1999).
- ⁶⁴ P. Hohenberg & W. Kohn. *Inhomogeneous electron gas*. Phys. Rev. **136**, B 864 (1964).
- ⁶⁵ A. Holas & N. H. March. *Construction of the Pauli potential, Pauli energy, and effective potential from the electron density*. Phys. Rev. A **44**, 5521 (1991).
- ⁶⁶ H. Imamura, H. Aoki & P. A. Maksym. *Spin blockade in single and double quantum dots in magnetic fields: a correlation effect*. Phys. Rev. B **57**, R4257 (1998).
- ⁶⁷ H. Imamura, H. Aoki & P. A. Maksym. *Symmetry of 'molecular' configurations of interacting electrons in a quantum dot in strong magnetic fields*. Physica B **249-251**, 214 (1998).
- ⁶⁸ A. Isihara & L. Ioratti. *Exact evaluation of the second-order exchange energy of a two-dimensional electron fluid*. Phys. Rev. B **22**, 214 (1980).
- ⁶⁹ A. Isihara, T. Toyoda & D. Y. Kojima. *Study of a two-dimensional electron gas in a magnetic field. I. Weak field / II. Intermediate field*. Phys. Rev. B **19**, 831/846 (1979).
- ⁷⁰ L. Jacak, P. Hawrylak & A. Wojs. *Quantum dots*. Springer, Berlin, 1998.
- ⁷¹ R. Jalabert, A. Douglas Stone & Y. Alhassid. *Statistical theory of Coulomb blockade oscillations: quantum chaos in quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **68**, 3468 (1992).
- ⁷² M. Jonson. *Electron correlations in inversion layers*. J. Phys. C: Solid State Phys. **9**, 3055 (1976).

- ⁷³ J. Kainz. *Quantenpunkte im hohen Magnetfeld. Anwendung eines neuen Verfahrens zur Lösung des N-Teilchenproblems*. Diplomarbeit, Universität Regensburg, 2000.
- ⁷⁴ E. O. Kane. *Energy band structure in p-type germanium and silicon*. J. Phys. Chem. Solids **1**, 82 (1956).
- ⁷⁵ E. O. Kane. *Band structure of indium antimonide*. J. Phys. Chem. Solids **1**, 249 (1957).
- ⁷⁶ M. Kastner. *Artificial atoms*. Physics Today **46**, 24 (1993).
- ⁷⁷ M. Kastner. *Technology and the single electron*. Nature **389**, 667 (1997).
- ⁷⁸ O. Klein, S. de Chamon, D. Tang, D. M. Abusch-Magder, U. Meirav, X.-G. Wen, M. A. Kastner & S. J. Wind. *Exchange effects in an artificial atom at high magnetic fields*. Phys. Rev. Lett. **74**, 785 (1995).
- ⁷⁹ E. Knill, R. Laflamme & G. J. Milburn. *A scheme for efficient quantum computation with linear optics*. Nature **409**, 46 (2001).
- ⁸⁰ W. Kohn. *Theory of Bloch electrons in a magnetic field*. Phys. Rev. **115**, 1160 (1959).
- ⁸¹ W. Kohn. *Cyclotron resonance and de Haas-van Alphen oscillations of an interacting electron gas*. Phys. Rev. **123**, 1242 (1961).
- ⁸² W. Kohn & L. J. Sham. *Self-consistent equations including exchange and correlation effects*. Phys. Rev. **140**, A 1133 (1965).
- ⁸³ J. König, H.-H. Lin & A. H. MacDonald. *Theory of diluted magnetic semiconductor ferromagnetism*. Phys. Rev. Lett. **84**, 5628 (2000).
- ⁸⁴ K. Königsberger. *Analysis 1*. Springer, Berlin, 1990.
- ⁸⁵ M. Koskinen, J. Kolehmainen, S. M. Reimann, J. Toivanen & M. Manninen. *Quantum dots in magnetic fields: unrestricted symmetries in the current spin-density functional formalism*. Europ. Phys. J. D **9**, 487 (1999).
- ⁸⁶ M. Koskinen, M. Manninen & S. M. Reimann. *Hund's rules and spin density waves in quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **79**, 1389 (1997).
- ⁸⁷ L. P. Kouwenhoven, C. M. Marcus, P. McEuen, S. Tarucha, R. Westervelt & N. S. Wingreen. *Electron transport in quantum dots*. In: L. L. Sohn, L. P. Kouwenhoven & G. Schön (Hrsg.), *Mesoscopic electron transport*, Band Series E 345, S. 105. Kluwer Acad. Publ., Dordrecht, 1997.
- ⁸⁸ L. P. Kouwenhoven, T. H. Oosterkamp, M. W. S. Danoesastro, M. Eto, D. G. Austing, T. Honda & S. Tarucha. *Excitation spectra of circular, few-electron quantum dots*. Science **278**, 1788 (1997).
- ⁸⁹ J. Kyriakidis, M. Pioro-Ladrière, M. Ciorga, A. S. Sachrajda & P. Hawrylak. *Voltage-tunable entanglement of electron pairs in quantum dots*. Phys. Rev. B **66**, 035320 (2002).
- ⁹⁰ L. D. Landau & E. M. Lifshic. *Quantum Mechanics*. Pergamon Press, Oxford, 1977.
- ⁹¹ P. M. Laufer & J. B. Krieger. *Test of density-functional approximations in an exactly soluble model*. Phys. Rev. A **33**, 1480 (1986).
- ⁹² R. B. Laughlin. *Anomalous quantum Hall effect: an incompressible quantum fluid with fractionally charged excitations*. Phys. Rev. Lett. **50**, 1395 (1983).

- ⁹³ A. M. Lee & N. C. Handy. *Exchange vector potential in current-density functional theory*. Phys. Rev. A **59**, 209 (1999).
- ⁹⁴ R. van Leeuwen & E. J. Baerends. *Exchange-correlation potential with correct asymptotic behavior*. Phys. Rev. A **49**, 2421 (1994).
- ⁹⁵ D. Levesque, J. J. Weis & A. H. MacDonald. *Crystallization of the incompressible quantum-fluid state of a two-dimensional electron gas in a strong magnetic field*. Phys. Rev. B **30**, 1056 (1984).
- ⁹⁶ M. I. Lubin, O. Heinonen & M. D. Johnson. *Spin ensemble density-functional theory for inhomogeneous quantum Hall systems*. Phys. Rev. B **56**, 10373 (1997).
- ⁹⁷ J. M. Luttinger & W. Kohn. *Motion of electrons and holes in perturbed periodic fields*. Phys. Rev. **97**, 869 (1955).
- ⁹⁸ A. H. MacDonald & S. M. Girvin. *Quasiparticle states and the fractional quantum Hall effect*. Phys. Rev. B **33**, 4414 (1986).
- ⁹⁹ G. D. Mahan. *Many-particle physics*. Kluwer Academic, New York, 2000.
- ¹⁰⁰ P. A. Maksym. *Eckardt frame theory of interacting electrons in quantum dots*. Phys. Rev. B **53**, 10871 (1996).
- ¹⁰¹ P. A. Maksym. *Quantum states of interacting electrons in a 2D elliptical quantum dot*. Physica B **249-251**, 233 (1998).
- ¹⁰² P. A. Maksym & T. Chakraborty. *Quantum dots in a magnetic field: Role of electron-electron interactions*. Phys. Rev. Lett. **65**, 108 (1990).
- ¹⁰³ Maple. *www.mapleapps.com*, 2002.
- ¹⁰⁴ J. Y. Marzin, J. M. Gerard, A. Izrael, D. Barrier & G. Bastard. *Photoluminescence of single InAs quantum dots obtained by self-organized growth on GaAs*. Phys. Rev. Lett. **73**, 716 (1994).
- ¹⁰⁵ Mathematica. *www.wolfram.com*, 2002.
- ¹⁰⁶ D. A. Mazziotti. *Contracted Schrödinger equation: determining quantum energies and two-particle density matrices without wave functions*. Phys. Rev. A **57**, 4219 (1998).
- ¹⁰⁷ P. L. McEuen, E. B. Foxman, J. M. Kinaret, U. Meirav, M. A. Kastner, N. S. Wingreen & S. J. Wind. *Self-consistent addition spectrum of a Coulomb island in the quantum Hall regime*. Phys. Rev. B **45**, 11419 (1992).
- ¹⁰⁸ P. L. McEuen, E. B. Foxman, U. Meirav, M. A. Kastner, Y. Meir, N. S. Wingreen & S. J. Wind. *Transport spectroscopy of a Coulomb island in the quantum Hall regime*. Phys. Rev. Lett. **66**, 1926 (1991).
- ¹⁰⁹ U. Merkt, J. Huser & M. Wagner. *Energy spectra of two electrons in a harmonic quantum dot*. Phys. Rev. B **43**, 7320 (1991).
- ¹¹⁰ B. Meurer, D. Heitmann & K. Ploog. *Single-electron charging of quantum-dot atoms*. Phys. Rev. Lett. **68**, 1371 (1992).
- ¹¹¹ S. A. Mikhailov. *Quantum-dot lithium in zero magnetic field: electronic properties, thermodynamics, and Fermi liquid-Wigner solid crossover in the ground state*. Phys. Rev. B **65**, 115312 (2002).

- ¹¹² S. A. Mikhailov. *Two ground-state modifications of quantum-dot beryllium*. Phys. Rev. B **66**, 115312 (2002).
- ¹¹³ S. A. Mikhailov & N. A. Savostianova. *Quantum-dot lithium in the strong-interaction regime: depolarization of electron spins by a magnetic field*. Phys. Rev. B **66**, 033307 (2002).
- ¹¹⁴ B. Miller. *Hochauflösende Kapazitätsspektroskopie an selbstorganisierten Quantenpunkten*. Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München, 1998.
- ¹¹⁵ W. Nolting. *Grundkurs Theoretische Physik. 5 Quantenmechanik Teil 2*. Vieweg, Braunschweig, 1997.
- ¹¹⁶ NTL. www.shoup.net/ntl/, 2002.
- ¹¹⁷ J. H. Oaknin, L. Martin-Moreno, & C. Tejedor. *Skyrmions and edge-spin excitations in quantum Hall droplets*. Phys. Rev. B **54**, 16850 (1996).
- ¹¹⁸ J. H. Oaknin, L. Martin-Moreno, J. J. Palacios & C. Tejedor. *Low-lying excitations of quantum Hall droplets*. Phys. Rev. Lett. **74**, 5120 (1995).
- ¹¹⁹ G. L. Oliver & J. P. Perdew. *Spin-density gradient expansion for the kinetic energy*. Phys. Rev. A **20**, 397 (1979).
- ¹²⁰ T. H. Oosterkamp, J. W. Janssen, L. P. Kouwenhoven, D. G. Austing, T. Honda & S. Tarucha. *Maximum-density droplet and charge redistributions in quantum dots at high magnetic fields*. Phys. Rev. Lett. **82**, 2931 (1999).
- ¹²¹ OpenMP. www.openmp.org, 2002.
- ¹²² J. J. Palacios, L. Martin-Moreno, G. Chiappe, E. Louis & C. Tejedor. *Capacitance spectroscopy in quantum dots: addition spectra and decrease of tunneling rates*. Phys. Rev. B **50**, 5760 (1994).
- ¹²³ R. Pauncz. *Spin eigenfunctions*. Plenum Press, New York, 1979.
- ¹²⁴ F. Pederiva, C. J. Umrigar & E. Lipparini. *Diffusion Monte Carlo study of circular quantum dots*. Phys. Rev. B **62**, 8120 (2000).
- ¹²⁵ J. P. Perdew & Y. Wang. *Accurate and simple analytic representation of the electron-gas correlation energy*. Phys. Rev. B **95**, 13244 (1992).
- ¹²⁶ D. Pfannkuche, V. Gudmundsson & P. A. Maksym. *Comparison of a Hartree, a Hartree-Fock, and an exact treatment of quantum-dot helium*. Phys. Rev. B **47**, 2244 (1993).
- ¹²⁷ L. N. Pfeiffer, K. W. West, H. L. Störmer, J. P. Eisenstein, K. W. Baldwin, D. Gershoni & J. Spector. *Formation of a high quality two-dimensional electron gas on cleaved GaAs*. Appl. Phys. Lett. **56**, 1697 (1990).
- ¹²⁸ D. Pines. *Elementary excitations in solids – Lectures on phonons, electrons, and plasmons*. Addison-Wesley, Reading, MA, 6. Auflage, 1963.
- ¹²⁹ W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky & W. T. Vetterling. *Numerical recipes – The art of scientific computing*. Cambridge University Press, Cambridge, 1989.
- ¹³⁰ R. Price & S. Das Sarma. *Exchange-correlation energy for a two-dimensional electron gas in a magnetic field*. Phys. Rev. B **54**, 8033 (1996).

- ¹³¹ A. Puente & L. Serra. *Oscillation modes of two-dimensional nanostructures within the time-dependent local-spin-density approximation*. Phys. Rev. Lett. **83**, 3266 (1999).
- ¹³² A. K. Rajagopal. *Theory of inhomogeneous electron systems: spin-density-functional formalism*. In: I. Prigogine & S. A. Rice (Hrsg.), *Advances in Chemical Physics*, Band 41, S. 59. John Wiley, New York, 1980.
- ¹³³ A. K. Rajagopal & J. Callaway. *Inhomogeneous electron gas*. Phys. Rev. B **7**, 1912 (1973).
- ¹³⁴ A. K. Rajagopal & J. C. Kimball. *Correlations in a two-dimensional electron system*. Phys. Rev. B **15**, 2819 (1977).
- ¹³⁵ M. Rasolt & F. Perrot. *Spontaneously symmetry-broken-current-carrying states in a strongly inhomogeneous interacting two-dimensional Fermi liquid*. Phys. Rev. Lett. **69**, 2563 (1992).
- ¹³⁶ M. Reed & B. Simon. *IV: Analysis of operators. Methods of modern mathematical Physics*. Academic Press, New York, 1978.
- ¹³⁷ S. M. Reimann, M. Koskinen & M. Manninen. *Formation of Wigner molecules in small quantum dots*. Phys. Rev. B **62**, 8108 (2000).
- ¹³⁸ S. M. Reimann, M. Koskinen, M. Manninen & B. R. Mottelson. *Quantum dots in magnetic fields: phase diagram and broken symmetry at the maximum-density-droplet edge*. Phys. Rev. Lett. **83**, 3270 (1999).
- ¹³⁹ S. M. Reimann & M. Manninen. *Electronic structure of quantum dots*. Rev. Mod. Phys. **74**, 1283 (2002).
- ¹⁴⁰ B. Reusch, W. Häusler & H. Grabert. *Wigner molecules in quantum dots*. Phys. Rev. B **63**, 113313 (2001).
- ¹⁴¹ P. Ring & P. Schuck. *The nuclear many-body problem*. Springer, Berlin, 1980.
- ¹⁴² A. S. Sachrajda, P. Hawrylak, M. Ciorga, C. Gould & P. Zawadzki. *Spin polarized injection into a quantum dot by means of the spatial separation of spins*. Physica E **10**, 493 (2001).
- ¹⁴³ A. S. Sachrajda, R. P. Taylor, C. Dharma-wardana, P. Zawadzki, J. A. Adams & P. T. Coleridge. *Spin-controlled resonances in the magnetotransport in quantum dots*. Phys. Rev. B **47**, 6811 (1993).
- ¹⁴⁴ C. Santori, D. Fattal, G. S. Solomon J. Vuckovic & Y. Yamamoto. *Indistinguishable photons from a single-photon device*. Nature **419**, 594 (2002).
- ¹⁴⁵ M. Seidl. *Approach to density functional theory, based on the limits of extreme correlations*. Habilitationsschrift, Universität Regensburg (unveröffentlicht), 2001.
- ¹⁴⁶ S. Siljamäki, A. Harju, R. M. Nieminen, V. A. Sverdlov & P. Hyvnen. *Various spin-polarization states beyond the maximum-density droplet: a quantum Monte Carlo study*. Phys. Rev. B **65**, 121306 (2002).
- ¹⁴⁷ K. S. Singwi, M. P. Tosi, R. H. Land & A. Sjölander. *Electron correlations at metallic densities*. Phys. Rev. **176**, 589 (1968).
- ¹⁴⁸ O. Steffens. *Künstliche Atome in Magnetfeld. Strom-Spin-Dichtefunktional-Rechnungen für Halbleiterquantenpunkte*. Dissertation, Universität Regensburg, 1999.

- ¹⁴⁹ O. Steffens, U. Rössler & M. Suhrke. *Generalized Hund's rule in the addition spectrum of a quantum dot*. Europhys. Lett. **42**, 529 (1998).
- ¹⁵⁰ O. Steffens & M. Suhrke. *Novel spin features in raman spectra of few-electron quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **82**, 3891 (1999).
- ¹⁵¹ D. R. Stewart, D. Sprinzak, C. M. Marcus, C. I. Duruoaz & J. S. Harris. *Correlations between ground and excited state spectra of a quantum dot*. Science **278**, 1784 (1997).
- ¹⁵² I. N. Stranski & L. Krastanov. *Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander*. Akad. der Wiss. Wien, Math.-Naturw. Kl. IIb **146**, 797 (1937).
- ¹⁵³ B. Tanatar & D. M. Ceperley. *Ground state of the two-dimensional electron gas*. Phys. Rev. B **39**, 5005 (1989).
- ¹⁵⁴ S. Tarucha, D. G. Austing, T. Honda, R. J. van der Haage & L. P. Kouwenhoven. *Shell filling and spin effects in a few electron quantum dot*. Phys. Rev. Lett. **77**, 3613 (1996).
- ¹⁵⁵ S. Tarucha, D. G. Austing, Y. Tokura, W. G. van der Wiel & L. P. Kouwenhoven. *Direct Coulomb and exchange interaction in artificial atoms*. Phys. Rev. Lett. **84**, 2485 (2000).
- ¹⁵⁶ M. Taut. *Two electrons in a homogeneous magnetic field: particular analytical solutions*. J. Phys. A **27**, 1045 (1994).
- ¹⁵⁷ L. H. Thomas. *The calculation of atomic fields*. Proc. Cambridge Phil. Soc. **23**, 542 (1927).
- ¹⁵⁸ D. J. Tozer, N. C. Handy & W. H. Green. *Exchange-correlation functionals from ab initio electron densities*. Chem. Phys. Lett. **273**, 183 (1997).
- ¹⁵⁹ D. J. Tozer, V. E. Ingamells & N. C. Handy. *Exchange-correlation potentials*. J. Chem. Phys. **105**, 9200 (1996).
- ¹⁶⁰ K. Varga, P. Navratil, J. Usukura & Y. Suzuki. *Stochastic variational approach to few-electron artificial atoms*. Phys. Rev. B **63**, 205308 (2001).
- ¹⁶¹ G. Vignale. *Center of mass and relative motion in time-dependent density-functional theory*. Phys. Rev. Lett. **74**, 3233 (1995).
- ¹⁶² G. Vignale. *Current density functional theory and orbital magnetism*. In: E. K. U. Gross & R. M. Dreizler (Hrsg.), *Density Functional Theory*, Band 337 aus der Reihe NATO ASI Series B: Physics, S. 485–511. Plenum Press, New York, 1995.
- ¹⁶³ G. Vignale & M. Rasolt. *Density-functional theory in strong magnetic fields*. Phys. Rev. Lett. **59**, 2360 (1987).
- ¹⁶⁴ G. Vignale & M. Rasolt. *Current- and spin-density-functional theory for inhomogeneous electronic systems in strong magnetic fields*. Phys. Rev. B **37**, 10685 (1988).
- ¹⁶⁵ G. Vignale, M. Rasolt & D. J. W. Geldart. *Magnetic fields and density-functional theory*. In: S. B. Trickey (Hrsg.), *Density functional theory of many-fermion systems*, Band 21 aus der Reihe *Advances in Quantum Chemistry*, S. 235–253. Academic Press, New York, 1990.
- ¹⁶⁶ Y. Wang & R. G. Parr. *Construction of exact Kohn-Sham orbitals from a given electron density*. Phys. Rev. A **47**, 1591 (1993).

- ¹⁶⁷ W. Wegscheider, L. N. Pfeiffer & K. W. West. *GaAs/AlGaAs quantum wire lasers and other low-dimensional structures fabricated by cleaved-edge overgrowth*. In: R. Helbig (Hrsg.), *Festkörperprobleme/Advances in Solid State Physics*, Band 35, S. 155. Vieweg, Braunschweig/Wiesbaden, 1996.
- ¹⁶⁸ J. Weis, R. J. Haug, K. von Klitzing & K. Ploog. *Competing channels in single-electron tunneling through a quantum dot*. Phys. Rev. Lett. **71**, 4019 (1993).
- ¹⁶⁹ X. G. Wen. *Chiral Luttinger liquid and the edge excitations in the fractional quantum Hall states*. Phys. Rev. B, **41**, 12838 (1990).
- ¹⁷⁰ A. Wensauer. *Spinabhängige Grundzustandsrechnungen für asymmetrische Quantendots*. Diplomarbeit, Universität Regensburg, 1999.
- ¹⁷¹ A. Wensauer & P. Hawrylak. *Summation rule for Coulomb matrix elements*. Unveröffentlicht, 2000.
- ¹⁷² A. Wensauer, J. Kainz, M. Suhrke & U. Rössler. *Circular parabolic quantum dots with repulsive off-center impurities: an SDFT study*. Phys. Stat. Sol. (B) **224**, 675 (2001).
- ¹⁷³ A. Wensauer, M. Korkusinski & P. Hawrylak. *Configuration interaction method for Fock-Darwin states*. Einzureichen bei Phys. Rev. B, 2003.
- ¹⁷⁴ A. Wensauer, M. Korkusinski & P. Hawrylak. *Theory of the spin singlet filling factor $\nu = 2$ quantum Hall droplet*. Phys. Rev. B **67**, 0353xx (2003).
- ¹⁷⁵ A. Wensauer, O. Steffens, M. Suhrke & U. Rössler. *Laterally coupled few-electron quantum dots*. Phys. Rev. B **62**, 2605 (2000).
- ¹⁷⁶ A. Wojs & P. Hawrylak. *Negatively charged magnetoexcitons in quantum dots*. Phys. Rev. B **51**, 10880 (1995).
- ¹⁷⁷ A. Wojs & P. Hawrylak. *Charging and infrared spectroscopy of self-assembled quantum dots in a magnetic field*. Phys. Rev. B **53**, 10841 (1996).
- ¹⁷⁸ A. Wojs & P. Hawrylak. *Spectral functions of quantum dots in the integer and fractional quantum Hall regime*. Phys. Rev. B **56**, 13227 (1997).
- ¹⁷⁹ S. R. Eric Yang, A. H. MacDonald & M. D. Johnson. *Addition spectra of quantum dots in strong magnetic fields*. Phys. Rev. Lett. **71**, 3194 (1993).
- ¹⁸⁰ C. Yannouleas & U. Landman. *Spontaneous symmetry breaking in single and molecular quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **82**, 5325 (1999).
- ¹⁸¹ D. Yoshioka & P. A. Lee. *Ground-state energy of a two-dimensional charge-density-wave state in a strong magnetic field*. Phys. Rev. B **27**, 4986 (1983).
- ¹⁸² Z. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, S. Beattie N, D. A. Ritchie & M. Pepper. *Electrically driven single-photon source*. Science **295**, 102 (2001).
- ¹⁸³ Q. Zhao, R. C. Morrison & R. G. Parr. *From electron densities to Kohn-Sham kinetic energies, orbital energies, exchange-correlation potentials, and exchange-correlation energies*. Phys. Rev. A **50**, 2138 (1994).
- ¹⁸⁴ G. Zumbach & K. Maschke. *Density-matrix functional theory for the N-particle ground state*. J. Chem. Phys. **82**, 5604 (1985).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all jenen danken, die Anteil am Gelingen dieser Arbeit haben:

An erster Stelle gilt mein Dank meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. Ulrich Rößler. Sein Engagement und seine persönliche Betreuung tragen maßgeblich zu dem hervorragenden Arbeitsklima in seiner Arbeitsgruppe bei. Durch die Kombination von Fordern und Fördern schafft er die idealen Voraussetzungen für wissenschaftliches Arbeiten. Ich möchte mich auch bei Herrn Privatdozent Dr. habil. Michael Suhrke bedanken, der bis zu seinem Ausscheiden aus der Arbeitsgruppe diese durch seine ständige Diskussionsbereitschaft und sein Interesse für physikalische und nicht-physikalische Themen mitgeprägt hat.

Dank schulde ich auch Herrn Prof. Dr. Pawel Hawrylak, der mich während meines Forschungsaufenthalts in Ottawa am Institute for Microstructural Sciences (IMS) des National Research Council Canada (NRC) in seine Quantum Theory Group aufgenommen hat. Zusammen mit Marek Korkusinski, Dr. Brandon van Zyl, Dr. Jordan Kyriakidis und den Mitgliedern der Quantum Physics Group unter Leitung von Prof. Dr. Andy Sachrajda hat er dazu beigetragen, daß das Jahr in Ottawa sowohl wissenschaftlich wie privat erfolgreich war.

Ebenso danke ich meinen Zimmerkollegen Gernot Deinzer, Ralf Hennig, Karin Schmalzl, Roland Onderka und Christian Lechner für die harmonische, entspannte Atmosphäre im Büro.

Außerdem danke ich allen Angehörigen des Lehrstuhls Richter. Die Kaffeerunde (mit Rätsel-Club!) ist ohne Zweifel der gern besuchte soziale Mittelpunkt des Lehrstuhllebens. Insbesondere gilt mein Dank unserer Sekretärin Frau Angela Reißer, deren kompetente Hilfe in allen Bürokratiefragen von großem Wert ist.

Während meiner Promotion habe ich auf verschiedenen Computersystemen gearbeitet und gerechnet. Deshalb bedanke ich mich bei allen Systemadministratoren in Regensburg und in Ottawa, die stets ein offenes Ohr für die Fragen und Probleme der User haben.

Das Korrekturlesen meiner Arbeit war die wohl nicht immer angenehme Aufgabe von Robert Schuster, Josef Kainz und meinem Vater. Danke.

Geld ist nicht alles, aber ohne Geld ist alles nichts. Deshalb danke ich dem Deutschen Akademischen Austauschdienst für die Finanzierung meines Auslandsaufenthalts in

Ottawa und der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Förderung nach meiner Rückkehr nach Regensburg.

Das Regionale Rechenzentrum Erlangen hat mir dankenswerterweise Rechenzeit auf der SGI Origin 3400 kostenlos zur Verfügung gestellt.

Zuletzt möchte ich meinen Eltern und meiner Schwester danken, die mir während der ganzen Promotion immer ein verlässlicher emotionaler Rückhalt waren.

Danke!

Andreas Wensauer

Februar 2003