Universiteit Antwerpen

Faculteit wetenschappen

Universiteit Antwerpen

Departement natuurkunde

Klassieke artificiële atomen met niet-identieke deeltjes.

Kwinten Nelissen
Promotor: Prof. Dr. F. Peeters
Co-promotor: Dr. Bart partoens

Eindverhandeling ingediend tot het bekomen van de meestergraad nanofysica

Academiejaar 2002-2003

1Inleiding

Klassieke artificiële atomen zijn al, zowel theoretisch als experimenteel, een studieonderwerp voor verschillende decennia. Deze systemen bestaan uit een eindig aantal geladen klassieke deeltjes die kunnen bewegen in een vlak en opgesloten worden door een extern aangelegde potentiaal, meestal parabolisch. Zij zijn dus als het ware het klassieke analogon van kwantumstippen. Typische experimentele realisaties van deze systemen zijn bv. elektronen op het oppervlak van vloeibaar helium, plasma's met stofdeeltjes, ionen in Paul en Penning traps en colloïdale systemen. Theoretisch werden zowel de statische (struktuur van de grondtoestand en metastabiele toestanden) en dynamische eigenschappen (eigenfrekwenties) onderzocht. Zo vond men dat de deeltjes zich ordenen in een ringstruktuur. Tot nu toe beschouwde men steeds 2D klassieke atomen met een eindig aantal *identieke* deeltjes. Recent werd echter een zeer interessant experiment beschreven waarin roterende magnetische schijfjes zichzelf organiseerden in ring-achtige patronen [9], gelijkaardig aan die in klassieke artifiële atomen. Bovendien werden in dit experiment niet allemaal identieke schijfjes gebruikt, maar hadden 1 of 2 schijfjes een grotere diameter. Dit experiment is een mooi voorbeeld van een dynamisch zelf-organiserend systeem.

De vorming van patronen door middel van zelf-organisatie heeft implicaties in de chemie, fysica, materiaalkunde en biologie. Tot nu toe is het onderzoek naar zelf-organisatie vooral gefocusseerd op statische systemen. Echter in dit experiment beschrijft men een dynamisch proces, waarin het gestructureerde patroon ontstaat doordat er energie gedissipeerd wordt: magneetschijfjes drijven op een vloeistofoppervlak en worden onderworpen aan een roterend magnetisch veld. Dit leidt tot een aantrekking voor alle deeljes naar het centrum en een hydrodynamische repulsie tussen de deeltjes. Deze competitie tussen aantrekkende en aftstotende krachten leidt tot de vorming van patronen die gelijkaardig zijn aan deze in 2D artificiële atomen.

Reeds meer dan honderd jaar geleden bestudeerde Mayer [11] de organisatie van permanente magneetjes drijvend op een vloeistof onder invloed van een centraal magneetveld. De ringenstruktuur die hij vond inspireerde Thomson tot zijn klassiek atoommodel [12]. En omdat Thomson er niet in slaagde analytische resultaten te verkrijgen voor een eindig aantal klassieke elektronen in een 3D harmonische potentiaal, beperkte hij de beweging van de elektronen tot twee dimensies, juist ons 2D klassiek artificieel atoom.

In het recente experiment gebruikt men nu niet enkel identieke schijfjes, maar neemt men 1 of 2 schijfjes met een grotere diameter, wat leidt tot heel wat complexere patronen. Dit experiment vormde de inspiratie voor de in deze thesis uitgevoerde studie. Aan de hand van Monte Carlo-simulaties werd de struktuur van klassieke artificiële atomen met niet-identieke deeltjes (verschillende massa en/of lading) bestudeerd.

1.1 Overzicht van deze thesis

In dit hoofdstuk zullen eerst vroegere theoretische resultaten i.v.m. 2D klassieke artifiële atomen besproken worden die van belang zijn voor de resultaten in volgende hoofdstukken. Ook zullen kort een aantal experimentele realisaties behandeld worden. Tot slot volgt een uitgebreide beschrijving van het experiment met de magnetische schijfjes en de gevonden resultaten.

Vroegere theoretische studies

1.1.1 Klassieke 2D-atomen

Hieronder volgen de resultaten van ref. [1] waarin de struktuur van de grondtoestand van een 2D klassiek atoom bestudeerd word. Dit model is het vertrekmodel van deze thesis en zal later aangepast worden aan systemen met niet identieke deeltjes.

1.1.2 Model

We beschouwen een systeem van N deeltjes die elkaar afstoten onder invloed van een Coulomb potentiaal, bijeengehouden worden door een harmonische inperkingspotentiaal en kunnen bewegen in twee dimensies. Het systeem kan beschreven worden door volgende Hamilton-functie:

$$H = \sum_{i=1}^{N} \frac{1}{2} m\omega_0^2 r_i^2 + \frac{e^2}{\varepsilon} \sum_{j>i}^{N} \frac{1}{|r_i - r_j|} \quad . \tag{1.1}$$

Hierin is ε de diëlektrische constante van het medium, ω_0 de inperkingsfrekwentie met r_i $|r_i|$ de afstand van het i^{de} elektron tot het minimum van de inperkingspotentiaal, e de lading van de elektron en tenslotte $|r_i - r_j|$ de afstand tussen het i^{de} en j^{de} elektron.

Om verdere numerieke bewerkingen te vergemakkelijken werd overgegaan naar volgende dimensieloze eenheden voor lengte, energie, kracht en frekwentie:

$$r' = \left(\frac{e^2}{\varepsilon}\right)^{1/3} \alpha^{-1/3} \ , \tag{1.2}$$

$$E' = \left(\frac{e^2}{\varepsilon}\right)^{2/3} \alpha^{1/3} \ , \tag{1.3}$$

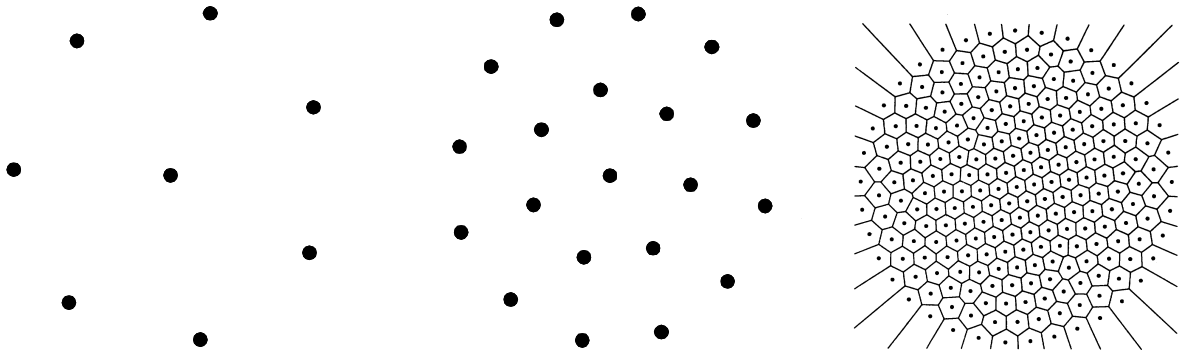
$$F' = \left(\frac{e^2}{\varepsilon}\right)^{1/3} \alpha^{2/3} , \tag{1.4}$$

$$\omega' = \omega_0 / \sqrt{2} , \tag{1.5}$$

met $\alpha = M\omega_0^2/2$. De Hamilton-functie kan dan geschreven worden als:

$$H = \sum_{i=1}^{N} r_i^2 + \sum_{i>i}^{N} \frac{1}{|r_i - r_j|} . \tag{1.6}$$

Merk op dat deze Hamilton functie enkel afhangt van het aantal opgesloten deeltjes. Alle resultaten zullen verder in dit rapport in dimensieloze eenheden worden gegeven. In het vervolg van deze thesis worden elektronen en geladen deeltjes als synoniem gebruikt.



Figuur 1-1: De grondtoestandconfiguraties voor systemen van 8, 20 en 230 elektronen. Voor het systeem met 230 elektronen wordt de structuur duidelijk m.b.v. de Voronoi-constructie.

De grondtoestandconfiguraties

De grondtoestandconfiguraties werden numeriek bepaald m.b.v. Monte Carlo-simulaties en een Newton optimalisatie techniek. (Deze methode zal in volgend hoofdstuk verder toegelicht worden.) De simulaties in ref. [1] tonen aan dat bij lage temperaturen de elektronen gelokaliseerd zijn op ringen. Als voorbeeld zijn de grondtoestandconfiguraties gegeven voor een systeem van 8, 20 en 230 elektronen in fig.1-1. Men ziet duidelijk een ringstructuur. De elektronen verdelen zich in een 8-elektronensysteem in een ring van 7 elektronen en één elektron in het midden. Men noteert deze configuratie als (1,7). In een 20-elektronenconfiguratie verdelen de elektronen zich in drie ringen in de configuratie (1,7,12). Op deze manier is er een volledige tabel van Mendeljev samengesteld zoals overgenomen in appendix A. Voor grotere systemen is de binnenste structuur bijna hexagonaal zoals in een oneindig 2D Wignerrooster. Op de rand ordenen de elektronen zich wel in ringen: de drie buitenste ringen bevatten eenzelfde aantal elektronen en vormen dus een 1D-Wigner-rrooster.

1.1.3 Systemen verwant aan 2D-atomen

In ref. [3] wordt de volgende inperkingspotentiaal gebruikt:

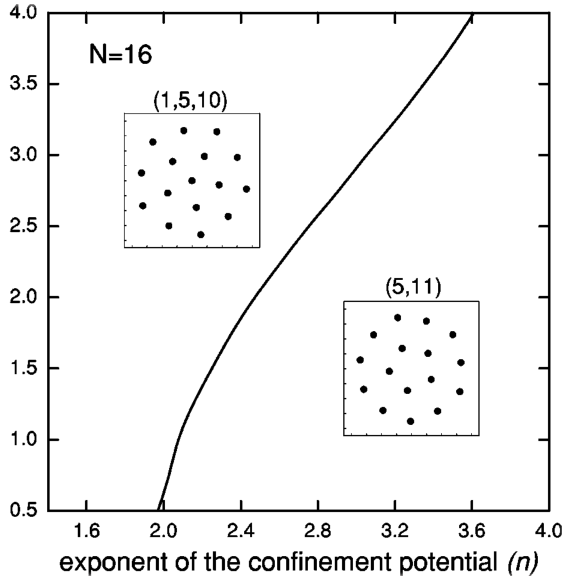
$$V_c(r)=\frac{1}{2}m\omega_0^2(r-r_0)^2 \ . \tag{1.7}$$

De elektronen zitten dus opgesloten in een ring met straal r_0'. Indien het aantal elektronen N toeneemt, zal het systeem verschillende structurele faseovergangen ondergaan. Voor kleine N-waarden vindt men dat de elektronen zich op een ring zullen bevinden. Vervolgens vormen de elektronen een zigzagpattroon. Tenslotte zal bij verder verhogen van het aantal elektronen een multi-ringstructuur gevormd worden en zullen kristalachtige structuren terug te vinden zijn.

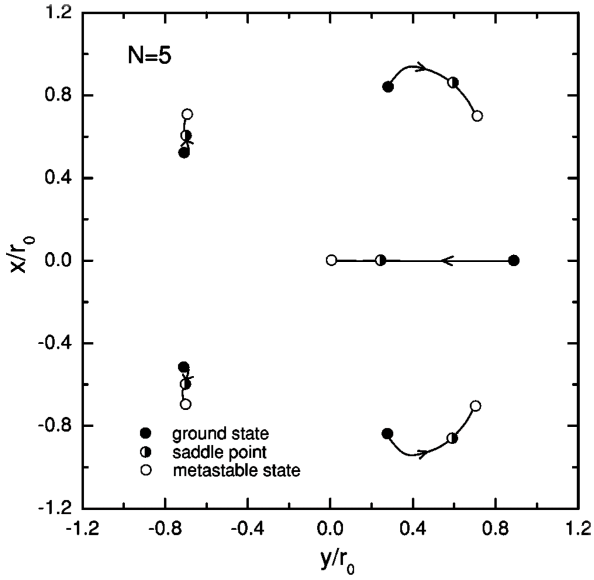
1.1.4 Transitie tussen grondtoestand en metastabieletoestand in 2D klassieke atomen [4]

In deze studie worden statische eigenschappen onderzocht van klassieke 2D-systemen met een eindig aantal geladen deeltjes die lateraal opgesloten zijn door een parabolische potentiaal. De energie en configuraties van de grond- en metastabieletoestand werden bekomen. Om de barrières en transitie tussen grond- en metastabieletoestand te onderzoeken werden eerst de zadelpunten tussen beide toestanden gelokaliseerd. Vervolgens werd er neerwaarts gewandeld van het zadelpunt naar de minima om zo de twee configuraties te bepalen die door het zadelpunt gescheiden worden. In fig. 1-3 ziet u hoe een deeltje naar het centrum wordt bewogen en vanaf het zadelpunt zeer snel de centrumpositie zal bezetten. Tevens werd de gevoeligheid van de grondtoestand nagegaan als functie van de functionele vorm van de inter-deeltjesinteractie en de

inperkingspotentiaal. In fig. 1-2 ziet u een fasediagram die de afhankelijkheid van de vorm illustreerd i.f.v. van de exponent van de inperkingspotentiaal ($V_c(r)=\frac{1}{2}m\omega_0^2 r^2$) en de interdeeltjesinteractiekracht. In Appendix B is in een tabel een overzicht gegeven van de grondtoestand en mogelijke meta-stabiele configuraties. In deze tabel is de energie, configuratie, straal van de ring, breedte van de ring en de laagste eigenfrequenties opgenomen.



Figuur 1-2: Het fase-diagram van de grondtoestand van 16 deeltjes. De afhankelijkheid van de vorm van de inperkingspotentiaal en de inter-deeltjesinteractie is getoond.[4]



Figuur 1-3: Het traject van deeltjes die een transitie maken van de grondtoestand naar de metastabieletoestand en het zadelpunt dat hen verbindt voor een 5-deeltjessysteem.[4]

Experimenteel gerealiseerde systemen

Gedurende de laatste jaren is er veel aandacht besteed aan de studie van de eigenschappen van systemen bestaande uit een eindig aantal geladen deeltjes. De deeltjes in deze systemen worden meestal ingesloten door een extern aangelegde inperkingspotentiaal die gecreëerd wordt door extern aangelegd magnetische of extern magnetische velden of een combinatie van beide. Het gedrag van deze ingevangen deeltjes hangt af van de Coulomb-koppelingsconstante Γ . Dit is de verhouding tussen de gemiddelde Coulomb-interactie-energie van een deeltje tot de gemiddelde thermische energie. Wanneer Γ groter is dan 1, zegt men dat het deeltjessysteem zich in het sterke-koppelingsgebied bevindt. Indien deze waarde voldoende groot is, verwacht men dat de deeltjes zich in een regelmatige structuur gaan ordenen.

1.1.5 Condensatie van ingevangen en gekoelde ionenwolken in kristallen

In ref. [5] vindt men foto's van ionen ingevangen door elektrische en magnetische velden. In deze elektrische en magnetische velden zullen deze deeltjes geordende structuren vertonen. In een aantal experimenten met een beperkt aantal geladen deeltjes zal een kleine verandering van de trap-parameters een plotse verandering van een regelmatige structuur tot een ionenwolk teweegbrengen en omgekeerd. Deze experimenten zijn belangrijk omdat ze tot nieuwe inzichten leiden in fenomenen zoals clustervorming, Wigner-kristalisatie en andere fenomenen die plaatsvinden in sterk gekoppelde plasma's.

Paul-traps

Indien men een klein aantal ionen wenst te bestuderen, kan men gebruik maken van Paul-traps om de ionen op te sluiten. Bij een Paul-trap is de effectieve inperkingspotentiaal het resultaat van een radiofrequent elektrisch veld. Deze inperkingspotentiaal heeft hyperbolische equipotentiaaloppervlakken waarin de beweging in de eerste orde harmonisch is. Deze experimentele opstelling sluit nauw aan met het model beschreven in sectie 1.1.1. De thermische beweging wordt gekoeld met 'laser cooling'[5,6]. De afstanden tussen de ionen in deze artificiële atomen en moleculen zijn van de orde van enkele microns, veel groter dus dan de afmetingen van echte atomen.

Penning-trap

De Paul-trap heeft echter het nadeel dat bij te grote ionenconfiguraties het systeem te sterk opwarmt onder invloed van het radiofrequente veld. Een betere oplossing is dan ook gebruik te maken van de Penning-trap. Een magnetisch veld zorgt ervoor dat de ionen de trap niet kunnen verlaten. Hierdoor zijn studies mogelijk van plasma's met honderden tot duizenden ionen bij een temperatuur onder 10 mK. Men vond op deze manier dat ionen binnen een ring afstanden van meer dan 100 μm konden afleggen in 0.1s, terwijl het seconden duurt om tussen verschillende schillen over te springen. Dit fenomeen werd eveneens waargenomen door middel van computersimulaties in ref [1] .

Storage rings

Indien men experimenten wil doen met grote Γ -waarden zijn de Penning-traps en Paul-traps ontoereikend. In 'heavy-ion storage rings' zijn de ionen sterk geïoniseerd zodat de Γ -waarde vele ordes groter zijn dan voor enkelvoudig geladen ionen. Metingen uitgevoerd in 1980 aan de 'proton storage ring' in Novosibirsk leken aan te geven dat de bundel een bepaalde geordende structuur bevat. Deze ordening werd aangetoond met computersimulaties door Rahman en

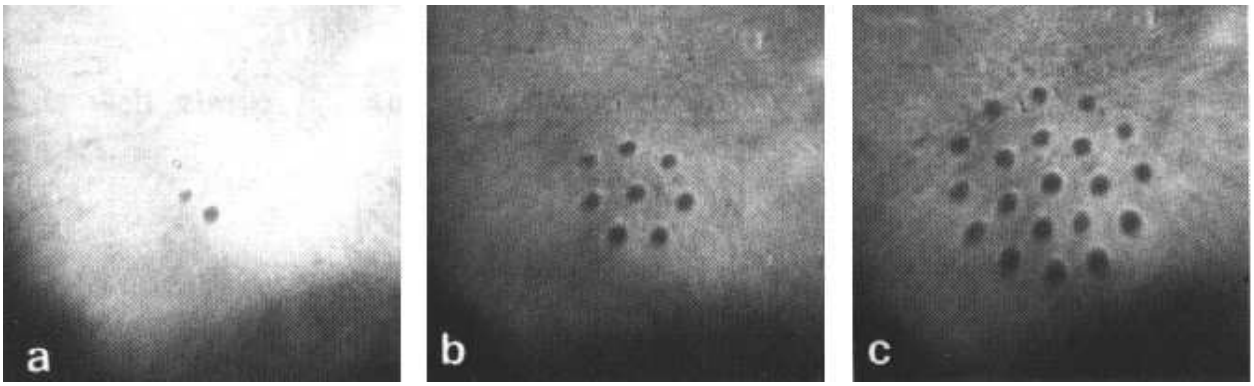
Schiffer [7] en Hasse en Schiffer [8] dat in 1.1.2 beschreven werd. Er moet echter rekening gehouden worden met een aantal effecten die niet in de berekening opgenomen zijn. Hiervan is de kromming van de ring waarschijnlijk het belangrijkst. De ionen die het verst gelegen zijn van het centrum zullen meer tijd nodig hebben om een ronde af te leggen dan een deeltje kort bij het centrum wat resulteert in een schuifkracht en dus in een verschillende temperatuur in de bundel.

Plasma's met stofdeeltjes

Het optreden van fenomenen zoals zelf-organisatie en patroonvorming heeft men ook geobserveerd in niet-evenwichtsplasma's. Door stofdeeltjes toe te voegen aan een plasma heeft men stabiele roosterstructuren geobserveerd [13,14]. Deze stofdeeltjes hebben een oppervlaktelading en vangen tot 10^3 elektronen en de Coulomb-koppelingsconstante kan dus zeer groot worden. Het interessante van deze experimenten is dat deze structuren onder de microscoop geobserveerd kunnen worden.

Elektronkuiltjes op het oppervlak van vloeibaar Helium

De 'self-trapping' van elektronen in macroscopische kuiltjes op het oppervlak van vloeibaar He werd gerapporteerd in ref[15]. Er wordt een elektrisch veld aangelegd loodrecht op het oppervlak. Vloeibaar He wordt gebruikt omdat dit een nagenoeg vlak substraat verschaft voor het onderzoek van een 2D-elektronsysteem. De koppeling tussen het substraat en de ladingen leidt tot een instabiliteit indien het elektrisch veld loodrecht op het oppervlak een kritische waarde overschrijdt. Dit is het gevolg van het zacht worden van oppervlaktegolven in de aanwezigheid van een Coulombsysteem. De homogene ladingsverdeling wordt vernietigd en de elektronen verdelen zich in kuiltjes. De interactie tussen deze kuiltjes, die men als nieuwe effectieve deeltjes kan beschouwen, wordt essentieel bepaald door Coulomb-afstoting. Zo'n kuiltje bevat typisch 5 ¿ 10^6 elektronen. Indien meerdere kuiltjes worden toegevoegd dan schikken die zich in ringconfiguraties zoals getoond in fig. 1-4.



Figuur 1-4: Configuraties voor (a) 2, (b) 8 en (c) 20 kuiltjes op het oppervlak van vloeibaar ^4He in de aanwezigheid van een externe cilindrische potentiaal.[]

Colloïdale deeltjes

Wanneer polystyreenbolletjes opgelost worden in water, worden ze sterk geladen en gaan ze elkaar afstoten. Experimenten in de groep van Prof. P. Leiderer aan de universiteit van Konstanz, waarbij men een druppel van zo'n oplossing plaatst tussen twee glazen platen, toonden aan dat deze bolletjes zich ordenen in ringstructuren. Door de toevoeging van zout kan men de afstoting tussen de colloïdale deeltjes laten afnemen en zo een overgang induceren naar een wanordelijke toestand.

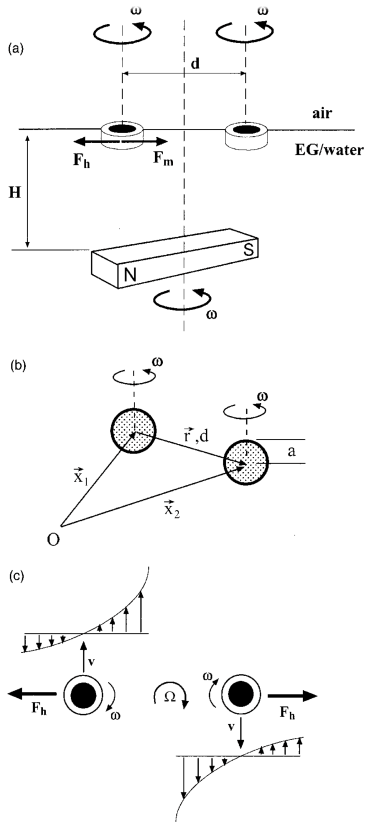
1.1.6 Dynamische zelf-organiserende aggregaten van millimeter kleine magneetobjecten roterend op een vloeistof-luchtinterface [2]

Dit experiment gaat over de zelf-organisatie van millimeter kleine gemagnetiseerde schijfjes die drijven op een vloeistof oppervlak. Onder de opstelling is een magneet aangebracht. Voor een stationaire magneet stelde men vast dat de schijfjes aangetrokken werden naar de polen waar ze ongeordende aggregaten vormden. Wanneer de magneet echter aan het draaien werd gebracht, werden de schijfjes aangetrokken tot het rotatiecentrum van de magneet. Bovendien begonnen de schijfjes te spinnen rond hun as. Dit resulteert in een draaiende vloeistofbeweging rondom het schijfje, wat leidt tot een hydrodynamische repulsie tussen de schijfjes. De combinatie van deze aantrekking tot het centrum en afstoting tussen de schijfjes leidde tot de vorming van geordende aggregaten, net zoals in klassieke artificiële atomen. Dit experiment werd eerst uitgevoerd met identieke schijfjes [2], en daarna met één of twee schijfjes met een grotere diameter [9]. De resultaten van het eerste experiment bestaande uit identieke schijfjes wordt hieronder in het kort behandeld, de resultaten van het tweede experiment volgen in hoofdstuk 3 waar ze vergeleken worden met onze numeriek bekomen resultaten.

Hieronder zal in het kort eerst de experimentele opstelling beschreven worden, vervolgens worden benaderende functionele vormen voor de opsluitingspotentiaal en de interactiepotentiaal tussen de schijfjes opgesteld.

Experimentele opstelling

Onder de vloeistof roteert een rechthoekige magneet met een hoeksnelheid ω (~200-1200rpm). De afstand tussen de bovenkant van de magneet en de vloeistof tweevlak bedraagt $\boldsymbol{H}$ ~ 10 mm. Op deze vloeistof-luchtinterface worden gedopeerde magnetische schijfjes geplaatst die ondergedompeld zijn in een vloeistof met uitzondering van hun topoppervlak. Onder invloed van het magneetveld zullen de schijfjes beginnen te spinnen met een hoeksnelheid ω en het gehele aggregaat met een hoeksnelheid Ω < 2rpm rond het centrum van de roterende magneet. Onder invloed van de magneetkracht $\boldsymbol{F}_m$ zullen de schijfjes naar het centrum aangetrokken worden. Een hydrodynamisch kracht $\boldsymbol{F}_h$, te wijten aan het stromingsveld gegenereerd door de roterende schijfjes, duwt de schijfjes uit elkaar. Figuur 1-5 (c) illustreert de oorzaak van de repulsiekracht voor het simpelste aggregaat samengesteld uit twee spinnende schijfjes.



Figuur 1-5 Schematisch experimentele opstelling.[9]

Vergelijking tussen de potentialen van roterende schijfjes en deze van klassieke artificiële atomen

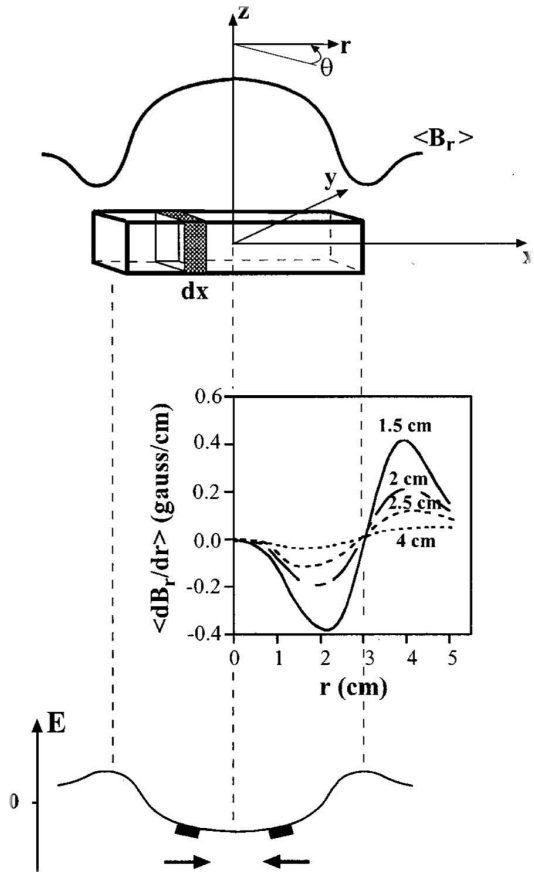
De gebruikte externe inperkingspotentiaal in modellen van klassieke artificiële atomen is meestal parabolisch [$V_C(r) \infty r^2$] of een harde wand opsluiting [$V_C(r)=0$ *als* $r < R_C$ *en* $V_C(r)= \infty$ *als* $r > R_C$]. In dit systeem voor H~3-4 cm, werd aangetoond dat de magneetkracht benaderd kan worden door een stuksgewijze lineaire functie in r, i.e., $Fm = -c_1' r$ als r<L/4 en $F_m = c_1'(r - L/2)$ als $r \geq L/4$, met L de lengte van de rechthoekige magneet [9]. Hierdoor kan men de magnetische inperkingspotentiaal in dit experiment ruwweg als parabolisch beschouwen voor r<L/4: $V_{C,M}(r) = c_1 r^2$, zoals ook getoond wordt in fig. 1.6. De coëfficiënt c_1 is een functie van de tussenvlak-magneetafstand en de magnetisatie M van de magneet.
De paarsgewijze interactie in klassieke artificiële atomen wordt vaak gemodelleerd als $1/r^n$. In dit experiment werden voor het opstellen van een model de schijfjes benadert door. Hydrodynamische overwegingen tonen dat in dit systeem de interactiekracht gegeven wordt door:

$$F_h = O(\rho\omega^2 a^7 / d^3) \text{ , [9]} \tag{1.8}$$

met ρ de schijfjesdichtheid , ω de rotatiesnelheid van de magneet, a de diameter van de schijfjes en d de afstand tussen twee schijfjes. De interactiepotentiaal schaalt dus als $1/r^2$. Deze interactie neemt sneller af met de afstand tussen twee sferen dan in het geval van Coulomb-interactie. De empirische Hamiltoniaan wordt dus gegeven door:

$$\overset{¿}{H} = \sum c_1(H, M) r^2 + \sum c_2^{ij}(\omega, a_i, a_j, \rho) |r_i - r_j|^{-2} \text{ .}$$

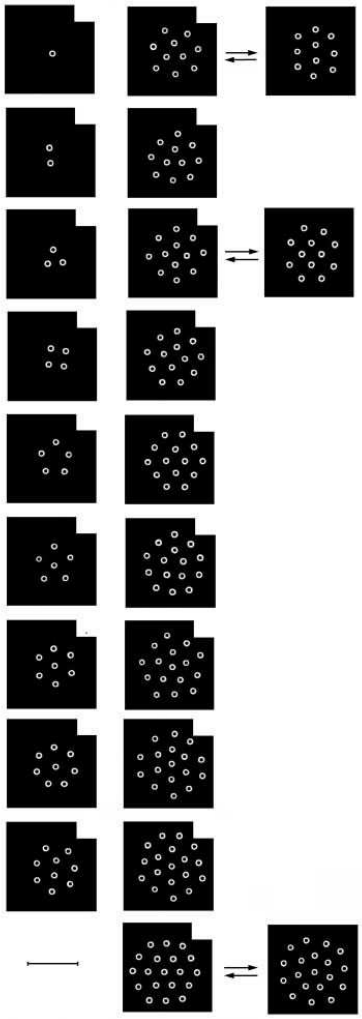
(1.9)



Figuur 1-6: Boven is een kwalitatief profiel van de radieel component van de magnetische kracht weergegeven. De middelste grafiek geeft het profiel van een magnetische kracht F_m die uitgeoefend wordt op een ferromagnetische puntobject. De onderste grafiek tenslotte, geeft een kwalitatief energieprofiel voor ferromagnetische objecten die gelokaliseerd zijn op het vloeistof-luchttussenvlak onder invloed van een roterend magnetisch veld.[9]

Experimenteel geobserveerde configuraties

Fig. 1.7 toont de in het experiment geobserveerde configuraties voor 1 t.e.m. 19 schijfjes met identieke diameter. Voor 1 t.e.m. 5 elektronen bevinden de schijfjes zich op 1 ring, het zesde schijfje plaatst zich in het centrum. Voor 6 t.e.m. 15 schijfjes werd een twee-ringenconfiguratie geobserveerd. Het 16 schijfje plaatst zich opnieuw in het centrum. Merk op dat voor 10, 12 en 19 schijfjes er twee configuraties getoond worden. Tijdens het experiment versprong de configuratie steeds tussen beide. Ondanks het feit dat de interactiepotentiaal hierboven benaderd werd door een $1/r^2$ potentiaal, komen deze configuraties toch bijna allemaal overeen met de berekende configuraties voor een Coulomb potentiaal [10]. Voor de systemen met experimenteel twee stabiele configuraties vindt men numeriek dat eentje steeds de grondtoestand is en de andere de eerste metastabiele toestand [4].



Figuur 1-7: Dynamische patronen gevormd voor een verschillend aantal *n* schijfjes roterend op een vloeistof-luchttussenvlak.

2 Fasediagrammen

In dit hoofdstuk wordt het model van vorig hoofdstuk uitgebreid tot niet-identieke deeltjes, waarbij zowel de lading als de massa kan verschillen. De gebruikte numerieke methode om de grondtoestand te bepalen wordt toegelicht en vervolgens worden de resultaten getoond voor systemen met slechts één afwijkend deeltje. Dit deeltje noemen we de nucleus. Fasediagrammen worden getoond voor de grondtoestand van één nucleus met 3, 4, 5, 6 en 7 elektronen, als functie van de lading en massa van de nucleus. In volgend hoofdstuk worden ook systemen met twee nuclei bestudeerd.

3.1 Het uitgebreide model

In vorig hoofdstuk werd de Hamilton-functie neer geschreven die de potentiële energie geeft van N identieke klassieke puntdeeltjes in een parabolische opsluitingspotentiaal en interagerend via een Coulomb potentiaal. Voor N niet-identieke deeltjes met verschillende lading en massa wordt deze Hamiltonfunctie

$$H = \sum_{i=1}^{N} \frac{1}{2} m_i \omega_0^2 r_i^2 + \frac{1}{\varepsilon} \sum_{j>i}^{N} \frac{e_i e_j}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} . \tag{3.1}$$

Om verdere numerieke bewerkingen te vergemakkelijken zullen we overgaan naar dimensieloze eenheden. Daarom is het nuttig om de lading en de massa uit te drukken in functie van respectievelijk een referentielading en -massa. We kunnen de lading e_i en e_j nu gaan schrijven als $e_i = e_i^{¿} \times E$ en $e_j = e_j^{¿} \times E$ met E de referentielading, en de massa m_i als $m_i = m_i^* \quad M$. We krijgen dan voor de Hamiltonfunctie:

$$H = \sum_{i=1}^{N} \frac{1}{2} m_i^* M \omega_0^2 r_i^2 + \frac{E^2}{\varepsilon} \sum_{j>i}^{N} \frac{e_i^* e_j^*}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} , \tag{3.2}$$

met M en E respectievelijk de referentiemassa en -lading. De afstand, energie, kracht en frequentie kunnen dan uitgedrukt worden in volgende eenheden:

$$r' = \left(\frac{E^2}{\varepsilon} \right)^{1/3} \alpha^{-1/3} , \tag{3.3}$$

$$E' = \left(\frac{E^2}{\varepsilon} \right)^{2/3} \alpha^{1/3} , \tag{3.4}$$

$$F' = \left(\frac{E^2}{\varepsilon}\right)^{1/3} \alpha^{2/3} , \tag{3.5}$$

$$\omega' = \omega_0 / \sqrt{2} , \tag{3.6}$$

met $\alpha = M\omega_0^2/2$. De dimensieloze Hamiltonfunctie kan dan geschreven worden als:

$$H = \sum_{i=1}^{N} m_i^* r_i^2 + \sum_{i>i}^{N} \frac{e_i^* e_j^*}{\left|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j\right|} . \tag{3.7}$$

Alle resultaten zullen verder in dit rapport in dimensieloze eenheden worden gegeven.

3.1 Numerieke methode

Om de toestand van minimale energie te vinden, werd de Metropolismethode toegepast. De deeltjes worden random in de inperkingspotentiaal geplaatst en men verplaatst de deeltjes zodat de potentiaal convergeert naar een minimum in het energielandschap. De ervaring leert ons dat we sneller naar een lokaal minimum convergeren indien deze methode aangevuld wordt met de methode van Newton. Niets garandeerd dat deze methode ons de grondtoestand zal opleveren. Om uiteindelijk de grondtoestand van het systeem te vinden, komt het erop aan een voldoende groot aantal van deze Monte Carlo-simulaties uit te voeren met telkens verschillende initiële random verdelingen van de deeltjes.
Hieronder vindt u een beschrijving van de Newton-optimalisatietechniek die gebruikt wordt om sneller te convergeren naar een lokaal minimum, waarbij de energie van het systeem tot zeer hoge nauwkeurigheid verkregen kan worden. Ook wordt op een intuïtieve manier een idee gegeven van hoeveel simulaties er nu nodig zijn om relatief zeker te zijn dat alle minima, zowel lokale als de grondtoestand, gevonden zijn. Als laatste wordt er aangegeven op welke manier men kan nagaan of een configuratie al dan niet stabiel is.

2.1.1 De Newton methode

Veronderstel dat de coördinaten van de elektronen in de cluster na n simulatiestappen gegeven wordt door $\left\{ r_{\alpha,i}^n , \alpha = x, y; i = 1, \ldots, N \right\}$. De potentiële energie in de omgeving van deze configuratie kan dan geschreven worden in volgende kwadratische vorm:

$$H\left[r_{\alpha,i}\right] = H\left[r_{\alpha,i}^n\right] - \sum_i \sum_\alpha H_{\alpha,i}\left(r_{\alpha,i} - r_{\alpha,i}^n\right) + \frac{1}{2} \sum_{i,j} \sum_{\alpha,\beta} H_{\alpha\beta,ij}\left(r_{\alpha,i} - r_{\alpha,i}^n\right)\left(r_{\beta,i} - r_{\beta,i}^n\right) ,$$

(3.8)

met $H_{\alpha,i}=-\partial H/\partial r^n_{\alpha,i}$ de kracht en $H_{\alpha\beta,ij}$ de dynamische matrix

$$H_{\alpha\beta,ij}=\frac{\partial^2 H}{\partial r^n_{\alpha,i}\partial r^n_{\beta,j}} \quad . \tag{3.9}$$

De voorwaarde voor minimale energie $\partial H\left[r_{\partial,i}\right]/\partial r_{\alpha,i}=0$ levert

$$\sum_j \sum_\beta H_{\alpha\beta,ij}\left(r_{\beta,j}-r^n_{\beta,j}\right)=H_{\alpha,i} \quad . \tag{3.10}$$

Deze methode is enkel geschikt in de buurt van een minimum, meer bepaald indien de dynamische matrix positief definiet is. Daarom wordt deze methode gebruikt na de metropolis-procedure. Bovendien wordt voorgaande uitdrukking vervangen door

$$\sum_j \sum_\beta \left(H_{\alpha\beta,ij}+\eta\delta_{\alpha\beta,ij}\right)\left(r_{\beta,j}-r^n_{\beta,j}\right)=H_{\alpha,i} \tag{3.11}$$

waarbij een dempingscoëfficient η ingevoerd is. Bij een eerste iteratie wordt η groot genomen (η = 10 -100) zodat de matrix zo goed als zeker positief definiet is. Indien in een volgende stap de totale energie van het systeem daalt, wordt η verminderd, in het andere geval vermeerderd. De ervaring leert ons dat een dergelijk algoritme voor het kiezen van de dempingscoëfficient convergentie verzekert. Het stelsel van lineaire vergelijkingen wordt opgelost met Gauss-eliminatie.

2.1.2 Aantal testen

Wat hier volgt is een intuïtieve benadering om een goede schatting te maken van het aantal Monte Carlo-testen die nodig zijn om alle minima te bepalen.
Omdat we hier te doen hebben met identieke deeltjes behalve één (de nucleus) zal het aantal testen toenemen t.o.v. de vroeger bestudeerde systemen met allemaal identieke deeltjes. Hierbij moet men het onderscheid maken tussen systemen waarbij er een klein massa- en ladingsverschil is tussen nucleus en elektronen en systemen waar er een groot verschil heerst. Eerst beschouwen we systemen met een klein massa- en ladingsverschil.
Stel we hebben een systeem met 4 elektronen en een nucleus. We vertrekken van een conventioneel model met 5 identieke ladingen. Eén van de metastabiele configuratie's van zo'n systeem is de (1,4)-configuratie, de gebruikte notatie wil zeggen dat één deeltje de centrumpositie bezet en de 4 elektronen zich op één ring bevinden rond de centrumpositie [4]. In vergelijking met een systeem bestaande uit identieke deeltjes zullen bij benadering twee maal meer testen nodig zijn omdat de nucleus zowel de centrale positie kan innemen als een positie op de ring. Dit zal leiden tot meerdere metastabiele toestanden in vergelijking tot conventionele systemen met identieke deeltjes. Indien we naar grotere systemen gaan met

meerdere ringstructuren kan deze nucleus zich initieel op iedere ring bevinden waardoor er een oerwoud van metastabiele toestanden ontstaat.
Indien echter het massa- en ladingsverschil voldoende groot is, zal het systeem sneller convergeren naar enkele stabiele toestanden. Er zullen minder testen nodig zijn. Dit kan men als volgt begrijpen. Indien bijvoorbeeld de massa van de nucleus relatief groot is ten opzichte van de elektronen, zal deze telkens de centrumpositie willen bezetten. Hier is immers de energie van het deeltje ten gevolge van de parabolische inperkingspotentiaal nul. Vermits de netto energiewinst voor de nucleus het grootst is, in een systeem waarbij $M_n > M_e$, zal deze de centrumpositie gaan bezetten (met M_n de massa van de nucleus en M_e de massa van een elektron). Hierdoor zullen minder testen nodig zijn omdat lokale minima in het energielandschap veel minder zullen voorkomen.

2.1.3 Stabiliteit van de configuratie

Om te controleren of de bekomen gesimuleerde configuraties stabiel zijn (en dus niet een maximum of zadelpunt in het energielandschap) laten we ieder deeltje rond zijn positie bewegen. Indien de energie rond de gesimuleerde positie van een configuratie afneemt, zal dit wijzen op een onstabiele configuratie.

2.2 Fasediagrammen

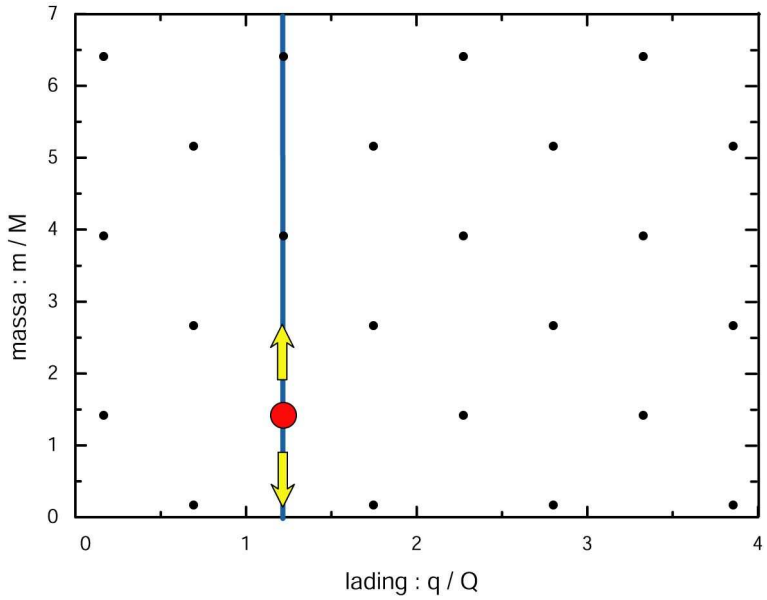
Om de invloed can de massa en lading van de nucleus na te gaan op de configuraties, construeren we een fasediagram. Hieronder volgen de fasediagrammen voor systemen met één nucleus en 3, 4, 5, 6 en 7 elektronen.

Om de fasegrenzen te bepalen, gaan we als volgt te werk:
We bepalen de grondtoestand en metastabiele toestanden op verschillende plaatsen in het fasediagram op een grid. Zo hebben we nu een idee hoe het fasediagram er ongeveer moet uitzien.
Vervolgens scannen we doorheen de faseruimte waarbij we de massa of lading van de nucleus constant houden. Dit kan door de lading of de massa van de nucleus stelselmatig te verhogen en na iedere stap gebruik te maken van de eerder beschreven Newtonmethode om te convergeren naar het lokale minimum. Hierdoor komen de faseovergangen in beeld voor een constante massa of lading.
In een derde stap wordt de fasegrens nauwkeurig bepaald. Het programma vergelijkt automatisch de energieën van de verschillende configuraties en tast zo de fasegrens af. Deze techniek zal verder geïllustreerd worden aan de hand van een 4-deeltjessysteem (dit is 1 nucleus met 4 elektronen) in volgende paragraaf.

2.2.1 4-elektronensysteem

Stap 1

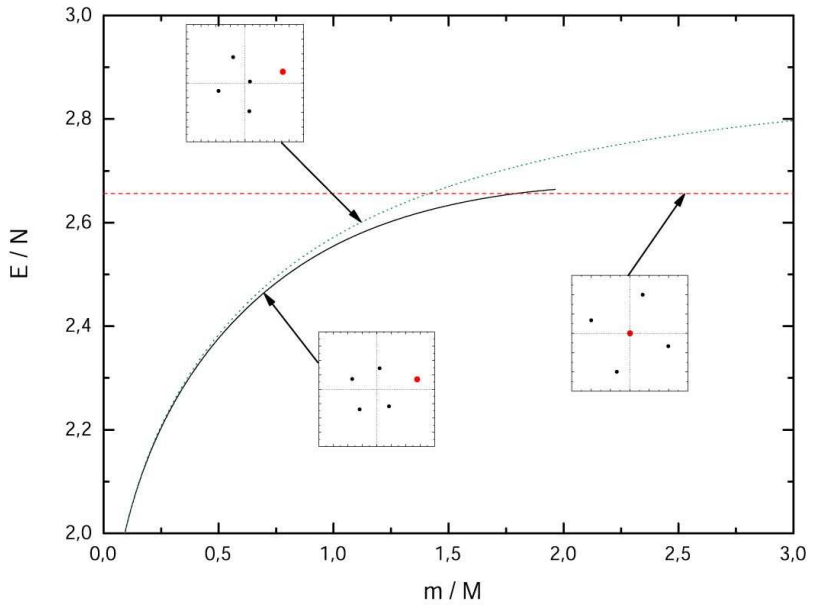
In de eerste stap leggen we een grid aan in de faseruimte zoals in fig. 2-1 waarop we de grondtoestand en de metastabiele toestanden zullen bepalen. Hierdoor krijgen we een beeld van het faselandschap met zijn grond- en metastabiele toestanden. Voor een 4-elektronensysteem stellen we slechts drie mogelijke stabiele configuraties vast.



Figuur 2-1: Sample-grid in de faseruimte.

Stap 2

Vervolgens kiezen we een grid-punt in de faseruimte waar zoveel mogelijk stabiele configuraties bestaan. Indien er geen grid-punt bestaat die alle configuraties omvat, kunnen we vertrekken van bijvoorbeeld twee of meerdere punten met dezelfde lading. Deze punten zullen het startpunt zijn voor het genereren van een dwarsdoorsnede, zoals geïllustreerd door de pijlen in fig. 2-1. De energie van de configuraties wordt gevolgd en we verkrijgen onderstaande grafiek 2-2 (hier voor $q/Q=1$) waaruit de faseovergang kan bepaald worden. De reden waarom we bij voorkeur de massa en niet de lading van de nucleus verhogen, is omdat er dan steeds één gemakkelijk te herkennen configuratie is die bovendien overal bestaat, nl. de nucleus in het centrum en de 4 elektronen er rond op een ring. Deze configuratie is immers onafhankelijk van de massa van de nucleus.



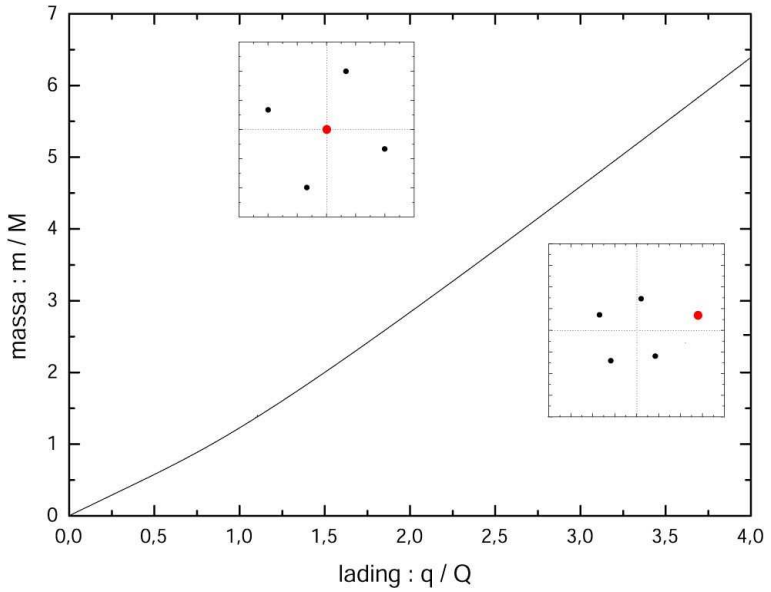
Figuur 2-2: Dwarsdoorsnede in de faseruimte bij constante lading. Energie per deeltje in functie van de relatieve massa voor *q/Q*=1 .

Stap 3

Aan de hand van de dwarsdoorsnede bekomen in voorgaande stap, kunnen we gemakkelijk de fasegrens tussen de verschillende configuraties, nl. het punt waarop een andere configuratie energetisch gezien gunstiger is dan de geselecteerde configuratie. We zouden deze procedure manueel kunnen voortzetten voor tussenliggende waarde voor de ladingen. Omdat dit een omslachtige procedure is, hebben we een programma ontwikkeld voor de generatie van een fasediagram.

Flow-diagram:

- Initialiseer de te onderzoeken configuraties
- Verhoog stelselmatig de massa tot faseovergang
- Verhoog/verminder de lading en verminder de massa tot terug in initiële configuratie



Figuur 2-3: fasediagram van een 4-elektronen klassiek artificieel atoom.

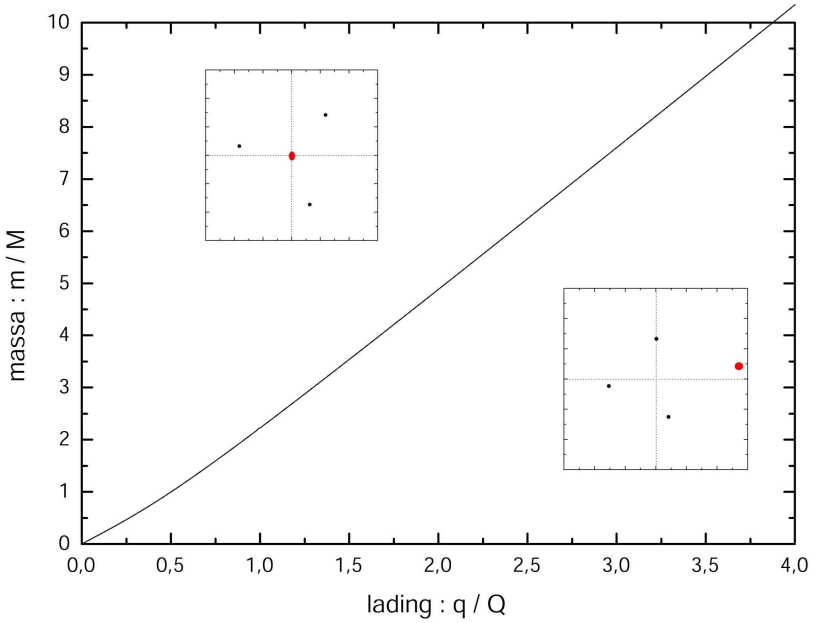
2.2.2 Overzicht fasediagrammen

In deze paragraaf volgt een overzicht van de bekomen fasediagrammen vorr 3 tot 7 elektronensystemen met telkens één nucleus opgesloten in een harmonische potentiaal en interagerend via de Coulomb-interactie. We zullen de configuraties classificeren in clusterconfiguraties, gesloten ringconfiguraties en open ringconfiguraties. In een clusterconfiguratie bevindt de nucleus zich niet in het centrum en groeperen de elektronen zich in een regelmatige structuur. Zowel bij open als gesloten ringconfiguraties bevindt de nucleus zich in het centrum, waarbij de elektronen een al dan niet gesloten ring vormen rond de nucleus.

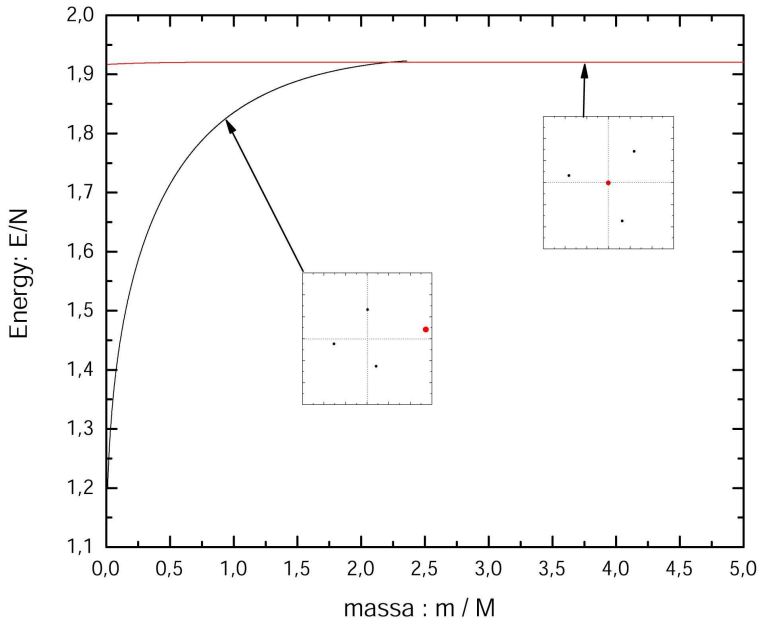
3-elektronensysteem

In figuur 2-4 is het fasediagram van een 3-elektronensysteem weergegeven. We constateren dat indien men start met een lading en massa van de nucleus die de clusterconfiguratie als grondtoestand oplevert en de massa van de nucleus vervolgens verhoogt, men in een gebied in het fasediagram terechtkomt waarin de grondtoestand de gesloten ringconfiguratie is. Een gelijkaardige vaststelling wordt gedaan indien men vanuit dit zelfde gebied de lading van de nucleus verlaagt. Met een clusterconfiguratie wordt een configuratie bedoeld waarbij de elektronen zich niet organiseren in ring(en) rond de nucleus, maar zich groeperen in een cluster langs de nucleus. De configuratie is dus afhankelijk van zowel de massa als de lading van de nucleus. De invloed van de massa kunnen we als volgt begrijpen: indien de massa van de nucleus groter wordt zal de nucleus de centrumpositie willen bezetten omdat de potentiële energie t.g.v. de inperkingspotentiaal van de nucleus hier nul is en dus leidt tot maximale

energiewinst van het totale systeem. Indien echter de massa van de nucleus klein is in verhouding tot de elektronen, zullen de elektronen de centrumpositie willen bezetten wat zal resulteren in een clusterconfiguratie. Anderzijds heeft men ook de invloed van de lading op de configuratie.



Figuur 2-4: Het fasediagram van een 3-elektronen klassiek artificieel atoom.

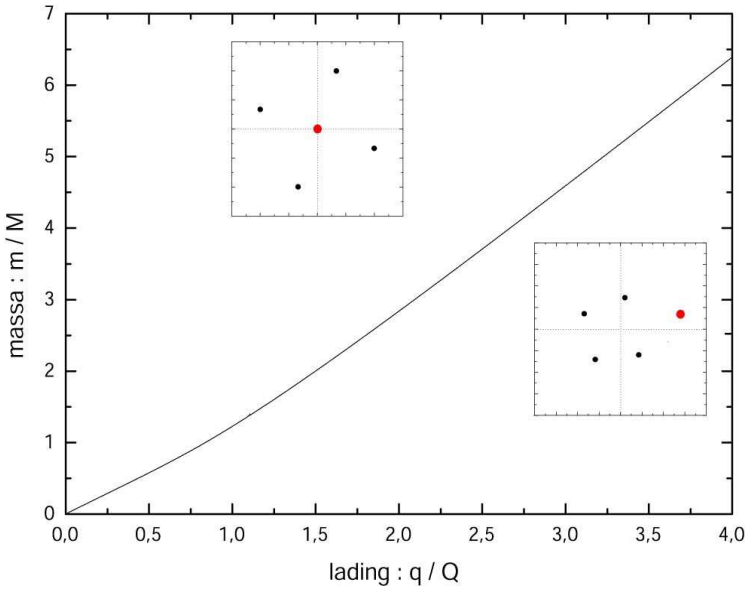


Figuur 2-5: Een dwarsdoorsnede bij constante lading bij *q/Q=1*.

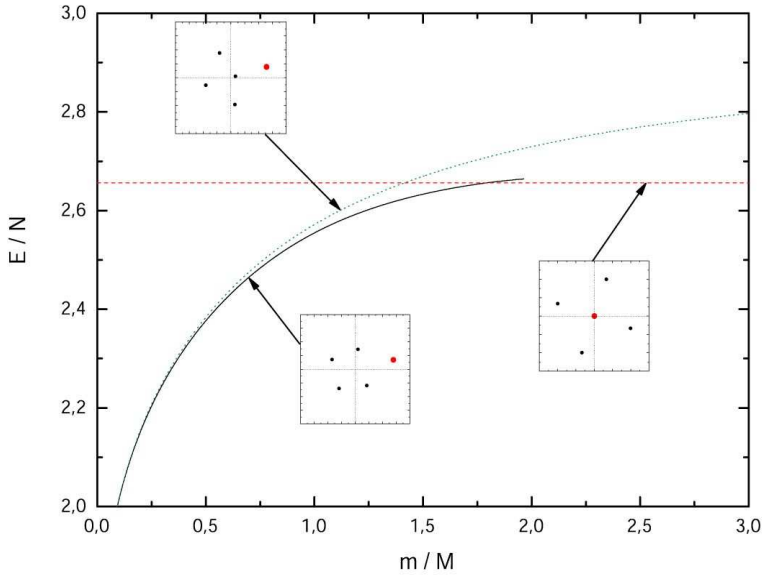
Indien de lading van de nucleus groot is zal deze, indien hij zich in het centrum van de inperkingspotentiaal zou bevinden, de elektronen verder weg gaan duwen waardoor de energie van de gesloten ringconfiguratie groter zou worden dan een clusterconfiguratie. Hierdoor kan men een lineair verloop verwachten van de fasegrens in de faseruimte. De gesloten ringconfiguratie is steeds een metastabiele configuratie als de clusterconfiguratie de grondtoestand is. De clusterconfiguratie daarentegen blijft maar heel even een metastabiele configuratie boven de fasegrens. De overgang tussen beide configuraties zal verder geïllustreerd worden aan de hand van zadelpunten in paragraaf 2-4. Als laatste constateren we spiegelsymmetrie t.o.v. de zwaartelijn van de open ringstructuur.

4-elektronensysteem

In vergelijking met een 3-elektronensysteem zal er één stabiele toestand extra bijkomen. In de resultaten van Mingui Kong [4] in appendix B zien we voor een systeem bestaande uit vijf identieke deeltjes er twee stabiele configuraties bestaan: de (1,4)- en de (5)-configuratie. Vertrekkende van de (1,4)-configuratie kan de nucleus zich initieel zowel in het centrum als op de schil bevinden. Hierdoor krijgen we een opsplitsing van de (1,4)- configuratie in twee configuraties, nl. een clusterconfiguratie (met één elektron bijna in het centrum) en een gesloten ringconfiguratie. Deze clusterconfiguratie zal echter nooit als grondconfiguratie voorkomen. Dit is contra forma met voorgaande intuïtieve benadering in paragraaf 2.1.2. Er is ook nog een andere clusterconfiguratie, nl. die met 4 elektronen rond het centrum, die wel de grondtoestand kan zijn, nl. als de massa van de nucleus voldoende klein is en/of de lading voldoende groot. Ook hier constateren we weer spiegelsymmetrie in de clusterconfiguraties.

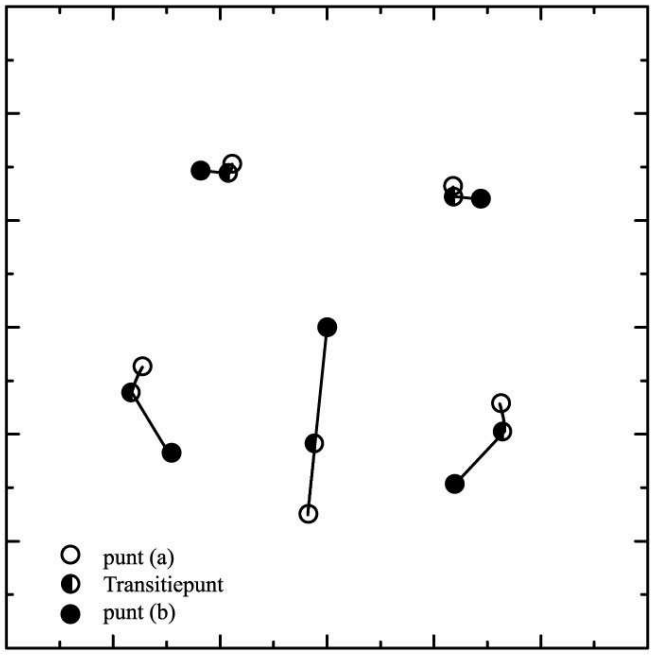


Figuur 2-6: Het fasediagram van een 4-elektronen klassiek artificieel atoom



Figuur 2-7: Een dwarsdoorsnede bij constante lading bij *q/Q*=1,4.

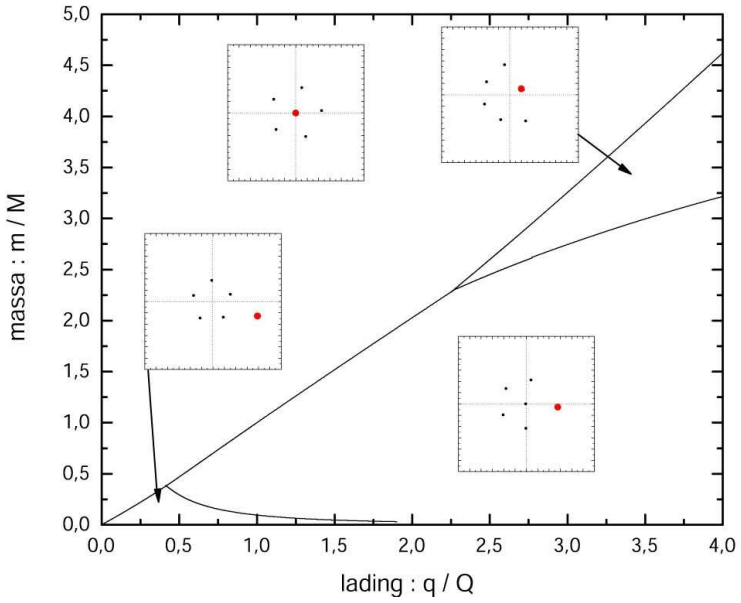
In dit 4 elektronensysteem kunnen we ook mooi illustreren hoe men overgaat van de ene fase naar de andere. Dit geldt voor alle overgangen in alle bestuurde systemen. Indien we, vertrekkend van de clusterconfiguratie, de lading verlagen, zien we dat de nucleus zich gaat bewegen naar het minimum van de inperkingspotentiaal. Aan de fasegrens zal de configuratie niet onmiddellijk verspringen naar de nieuwe grondtoestand. Dit hysteresis gedrag ziet men duidelijk in fig. 2-7 waarbij configuratie (b) de grondconfiguratie wordt op het snijpunt van beide krommen, maar configuratie (a) nog even blijft bestaan als metastabiele toestand. Verlaagt men de lading van de nucleus echter verder, dan zal deze metastabiele toestand vervallen in de grondtoestand. Visueel kan men dat voorstellen als een potentiaalbarrière die heerst tussen beide configuraties. Deze potentiaalbarrière zal gaan versmallen tot hij volledig verdwenen is. Op dit moment zal er overgegaan worden van configuratie (a) naar configuratie (b). Het traject van de schijfjes wordt geïllustreerd in fig. 2-8. Merk de overeenkomst op met fig. 1-3 waarin het traject van deeltjes getoond wordt die een overgang maken van de grondtoestand naar een metastabiele toestand via het zadelpunt.



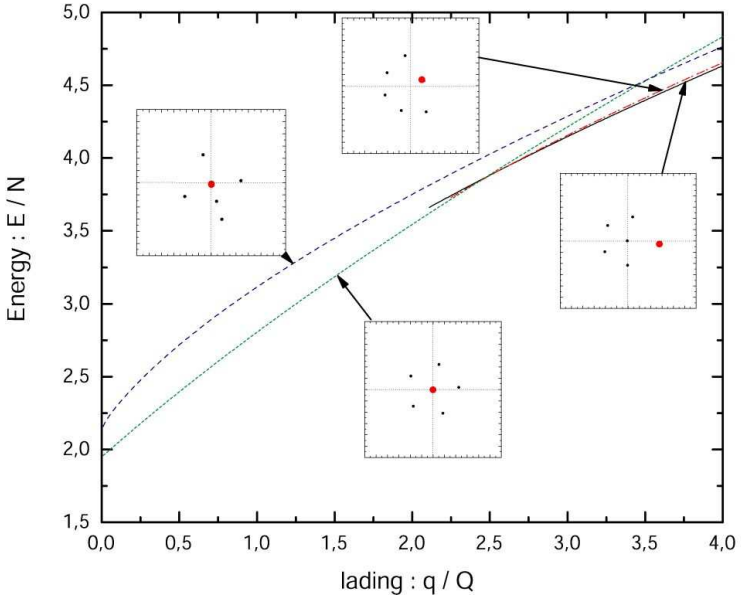
Figuur 2-8: Transitie tussen toestand (a) en (b).

5-elektronensysteem

Voor een 5-elektronensysteem zitten we intrinsiek in dezelfde situatie. In appendix B zien we dat voor een 6-elektronensysteem er twee stabiele configuraties bestaan: nl. (1,5)- en de (6)-configuratie. In dit geval zal echter de clusterconfiguratie (met een elektron bijna in het centrum) die ontstaat uit de (1,5)-configuratie gaan meedingen voor de grondtoestand. De afgeleide van de (6)-configuratie vinden we terug, in het gebied met grote nucleuslading, tussen (1,5)-openringconfiguratie en de (1,5)-clusterconfiguratie. De clusterconfiguratie (met 5 elektronen rond het centrum), die de grondtoestand is in een klein gebied met kleine nucleuslading en –massa is in feite dezelfde configuratie maar dan met de nucleus verder verwijderd van het centrum. Er zal tevens een nieuwe configuratie ontstaan met een elektron en de nucleus samen rond het centrum. Deze zal echter nooit de grondtoestand worden, maar steeds blijven bestaan als een metastabiele toestand. Opnieuw stellen we spiegelsymmetrie vast.



Figuur 2-9: Fasediagram van een 5-elektronen klassiek artificieel atoom.

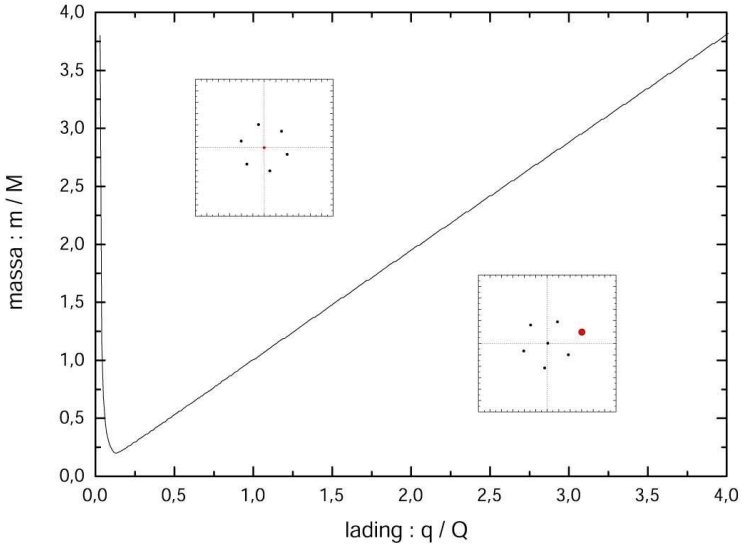


Figuur 2-10: Dwarsdoorsnede bij constante massa bij *m/M*=2,4.

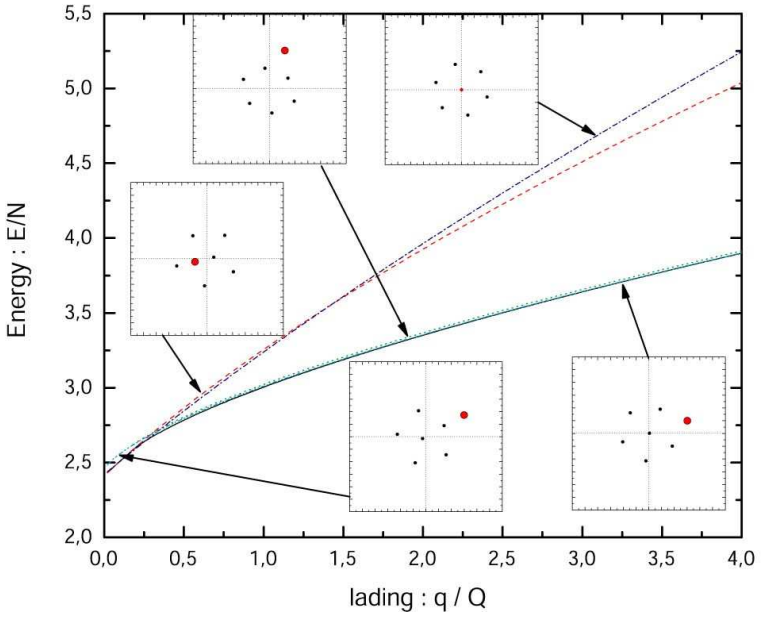
6-elektronensysteem

Ondanks het feit dat er veel stabiele configuraties mogelijk zijn, komen er slechts twee als grondconfiguratie voor. De scherpe faseovergang bij een kleine lading voor de nucleus kan men als volgt begrijpen. Indien we de lading van de nucleus verlagen, zal deze zich naar het centrum van de inperkingspotentiaal bewegen. Op een gegeven moment zal de nucleus zich

binnen de elektronenschil bevinden. Hierdoor zal er één van de elektronen en de nucleus omsloten zijn door een elektronenschil. Vanaf dit moment kan men stellen dat dit elektron en de nucleus zich gaan gedragen als één deeltje waardoor er een grotere pakkingsdichtheid ontstaat, waardoor de potentiële energie t.g.v. de inperkingspotentiaal geminimaliseerd wordt. Vanaf het moment dat deze nucleus ingesloten is door de elektronen schil zal dit een zeer energetisch voordelige configuratie blijken te zijn met een lagere energie dan de gesloten ringconfiguratie.



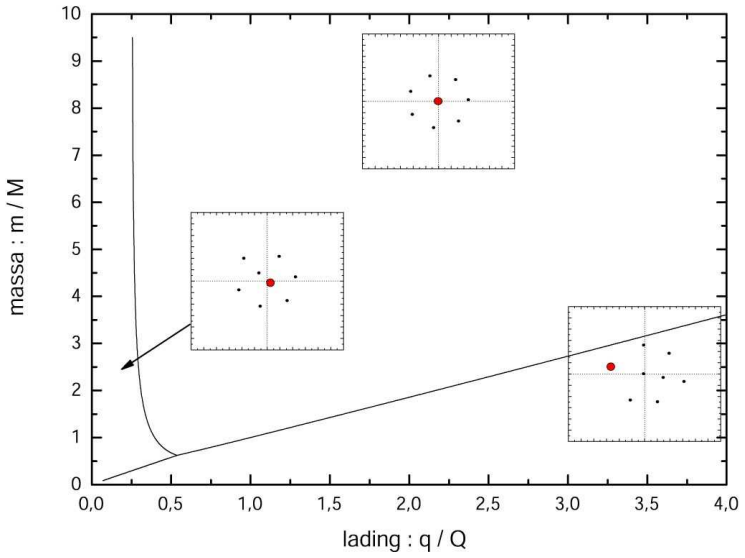
Figuur 2-11: het fasediagram van een 6-elektronen klassiek artificieel atoom.



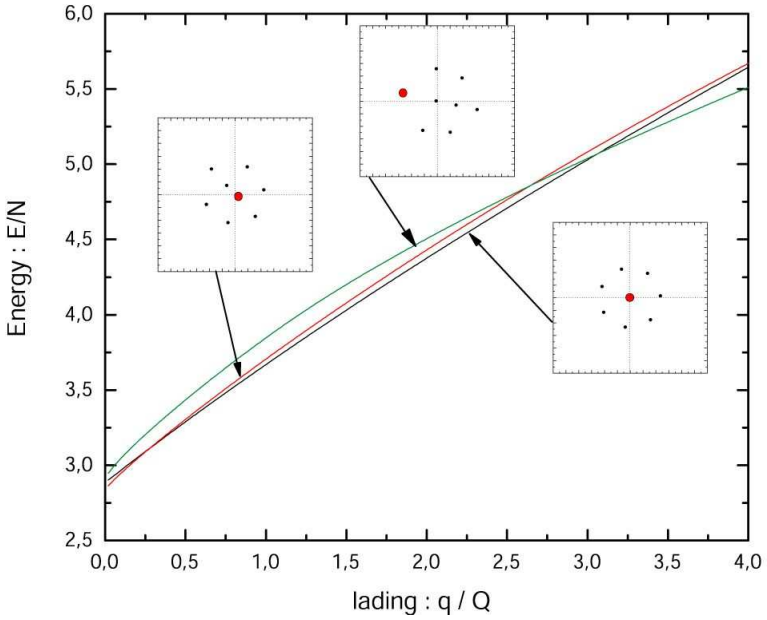
Figuur 2-12: Een dwarsdoorsnede bij constante massa bij *m/M=0,3*.

7-elektronensysteem

In appendix B vinden we dat de grondtoestandsconfiguratie voor 8 identieke deeltjes gegeven wordt door (1,7). Er is geen metastabiele configuratie. De afgeleide gesloten ringconfiguratie (dus met het elektron in het centrum vervangen door de nucleus) is de grondtoestand voor grote nucleusmassa. De afgeleide configuratie met een elektron op de ring dat vervangen wordt door de nucleus, evolueert tot de clusterconfiguratie met twee elektronen rond het centrum. Deze configuratie is de grondtoestand als de massa van de nucleus voldoende klein is en de lading voldoende groot. Net zoals in het 6-elektronensysteem vinden we bij kleine nucleuslading dat de configuratie met de nucleus en één elektron in het centrum de grondtoestand wordt.



Figuur 2-13: het fasediagram van een 7-elektronen klassiek artificieel atoom.



Figuur 2-14: Een dwarsdoorsnede bij constante massa bij *m/M*=2,7.

2.2.3 Conclusie

Hieruit kunnen we concluderen dat:

- We stellen vast dat het aantal metastabiele configuraties toeneemt met het aantal elektronen. Dit sluit aan bij voorgaande intuïtieve benadering van het aantal testen.
- Er komen telkens op zijn minst twee configuraties voor als grondtoestand, nl. één clusterconfiguratie en een gesloten (1,n)-ringstruktuur.
- Hoe meer elektronen het aggregaat bezit, hoe kleiner de helling zal zijn tussen de (1,n) gesloten ringcongifuratie en de andere clusterconfiguratie, met de lading van de nucleus groter dan 1.
- Vanaf 6 elektronen wordt de grondtoestand gevormd bij een kleine lading van de nucleus door een configuratie met de nucleus en één elektron rond het centrum met de andere elektronen rondom. Dit centrale elektron gedraagd zich dan samen met de nucleus als het ware als één deeltje.
- Ondanks het feit dat het aantal metastabiele toestanden toeneemt met toenemend aantal elektronen, blijft het aantal mogelijke grondtoestanden eerder beperkt.

3 Vergelijking met het experiment

Dit hoofdstuk is volledig gewijd aan een vergelijkende studie tussen de experimenten in ref. [9] en onze numerieke resultaten bekomen via Monte Carlo-simulaties aangevuld met een Newton optimalisatie techniek.
In het experiment worden specifiek twee types van aggregaten onderzocht: (i) deze waarbij één schijfje veel groter is dan de anderen en (ii) deze waarin twee schuifjes veel groter zijn dan de anderen. In het eerste type van aggregaten zullen de schijfjes zich in schillen of clusters organiseren rond de grote schijf. Als pictografische analogie zullen we het grote schijfje de nucleus noemen en de kleinere schijfjes elektronen. Het aggregaat in zijn geheel met één nucleus zullen we in het verder verloop een artificieel atoom noemen, en aggregate, bestaand uit twee nuclei een artificiele molecule.
Dit hoofdstuk is ingedeeld in drie delen: onze numeriek bepaalde configuraties worden in 3.1 vergeleken met de experimenteel geobserveerde configuraties voor de artificiële atomen en in 3.2 met de experimenteel geobserveerde configuraties voor de klassieke artificiële moleculen. Een algemeen besluit volgt in 3.3.

3.1 Klassieke artificiële atomen

De meeste literatuur over klassieke artificiële atomen is gefocusseerd op identieke deeltjes. Hier zullen we echter klassieke artificiële atomen bestuderen die bestaan uit een nucleus, in het experiment de grote schijf, en n elektronen, de kleine schijfjes in het experiment. In het experiment werd er nagegaan hoe de atoommorfologie o.a. afhankelijk is van de rotatiesnelheid van de rechthoekige magneet (wat ook de exacte interactie tussen de deeltjes bepaald) en er werden kwalitatieve regels opgesteld die de organisatie van artificiële atomen beschrijven. Deze bevindingen zullen getoetst worden aan de theoretisch gevonden configuraties.

3.1.1 Experimentele resultaten

Het experiment werd uitgevoerd voor verschillende diameters voor de nucleus. Fig. ??? toont de experimentele configuraties, de diameter van de nucleus in de bovenste twee rijen (nl. 2.42 mm) is groter dan die in de onderste twee (nl. 2.08 mm). De diameter van de elektronen is steeds 1.27 mm. De verschillen tussen de configuraties in beide experimenten zijn erg klein als het aantal elektronen klein is ($n < 15$). Indien er meer elektronen zijn, zijn de configuraties met de kleinere nucleus meestal complexer: er ontstaan clusters van elektronen. Hieronder volgt een kort overzicht van de bevindingen van ref [9] met betrekking op klassieke artificiële atomen voor de experimenten met de kleinste nucleus.

n < 5: Open ringconfiguraties.

n = 6; n = 7: Stabiele configuraties bestaan op twee manieren: een eerste configuratie waarin de kleinere schijfjes een gesloten schil vormen en een tweede configuratie waarin de kleinere schijfjes een open schil vormen.

n = 8; n = 9: Gesloten ringconfiguraties.

n = 10: Twee types van ordening worden geobserveerd: één enkele schil met 10 schijfjes en een dubbele schilstructuur. Dit resulteert in een maximale bezetting van 9 à 10 elektronen van de binnenste schil.

10 < n < 15: Dit vormen tweeschillige aggregaten met acht elektronen in de eerste schil en een incomplete tweede schil.

14 < n < 20: Er zijn negen elektronen in de eerste schil, de tweede schil is niet gesloten

n = 20: De tweede schil is gesloten, het nummer van de eerste schil wordt gereduceerd tot zeven of acht.

20 < n <25: Het aantal elektronen in de eerste schil stijgt langzaam terug om tegen n = 24 terug negen te bereiken.

3.1.2 Theoretische resultaten

Theoretisch werden de configuraties zowel bepaald voor een Coulomb-interactie tussen de elektronen als voor een $1/r^2$ interactiepotentiaal. Het is uiteraard a priori niet duidelijk welke waarde er voor de lading en massa moet gekozen worden om een zo goed mogelijke overeenkomst te krijgen met het experiment. We vonden de beste overeenkomst voor volgende keuze: $m/M=4$ en $q/Q=4.4$. Merk op dat deze waarden dichtbij de fasegrens liggen op de getoonde fasediagrammen in vorig hoofdstuk. In fig. ??? worden onder de experimentele configuraties ook onze theoretische getoond, de bovenste rij voor de Coulomb-interactie, de onderste voor de $1/r^2$ interactiepotentiaal. Merk op dat beide resultaten weinig verschillen.

********** HIERONDER VOOR CONCLUSIE

Bij een vergelijking met de theoretisch bekomen resultaten zien we dat de theoretisch bekomen resultaten relatief weinig afwijken met de resultaten bekomen in het experiment. Een overzicht van de verschilpunten is hieronder weergegeven:

(1) In de theoretisch bekomen configuraties zal in vergelijking met het experiment, één elektron soms gepromoveerd zijn van de binnenste naar de buitenste schil

(2) Theoretisch komt de gesloten ringconfiguratie reeds eerder voor.

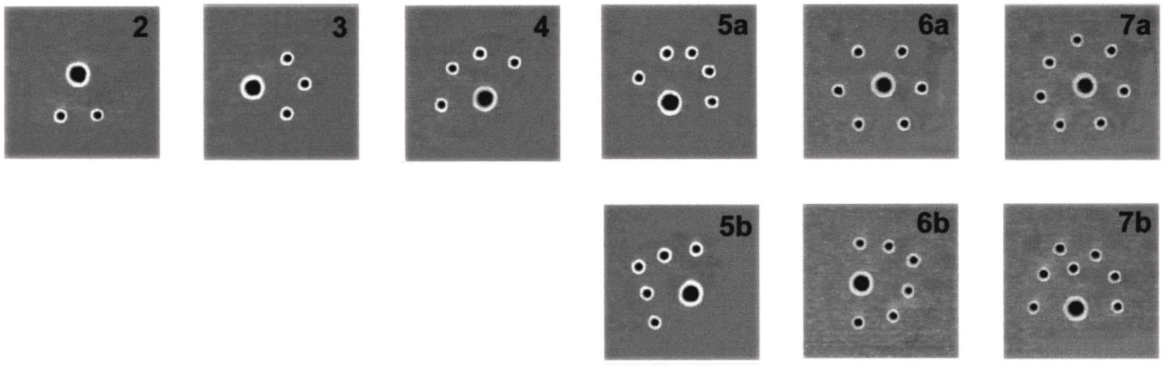
(3) Vanaf acht elektronen komt de twee schil configuratie reeds voor.

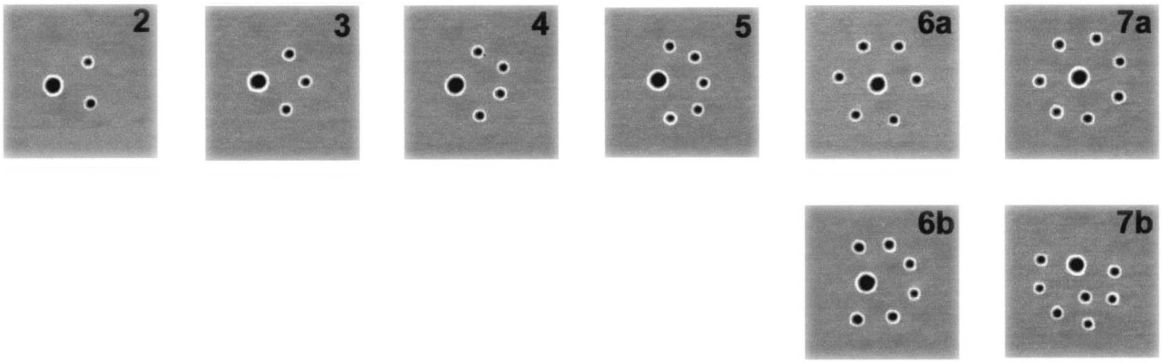
(4) Ingevangen elektronen komen niet voor in de grondconfiguratie en in de eerst volgende metastabiele toestand.

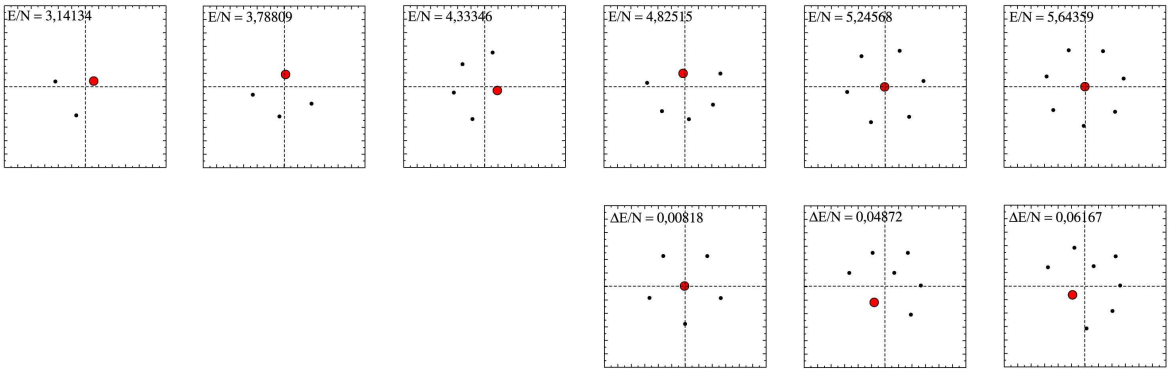
Verklaring:

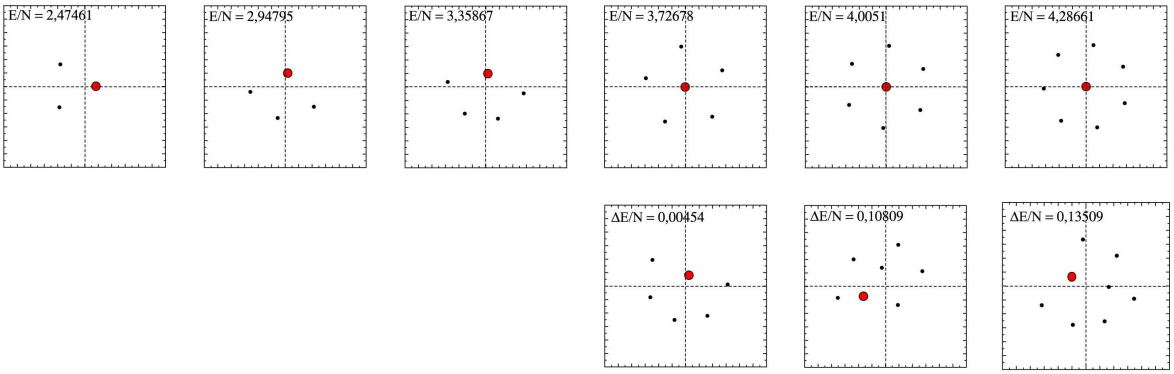
Ondanks de goede overeenkomst tussen theorie en experiment zijn er toch enkele verschilpunten. Zo is er geen perfect homogeen magneetveld in het experiment en is het experimenteel systeem een dynamisch systeem in tegenstelling tot een statisch theoretisch systeem. Ook is het moeilijk om te komen tot een goede parameterfit tussen theorie en experiment, omdat de coëfficiënten van de beschrijvende Hamiltoniaan op empirische wijze bepaald moeten worden. Een laatste oorzaak kan gezocht worden in de grootte van de schijfjes. Deze schijfjes hebben een diameter van ongeveer 1 mm en kunnen slechts in benadering aanzien worden als puntladingen, waardoor randeffecten zoals wrijving met oppervlak een rol kan spelen. Uit de fasediagrammen in voorgaand hoofdstuk bleek reeds dat des te groter het aggregaat is, des te groter de afhankelijkheid van de massa en de lading van de nucleus. Kleine aggregaten bleken vrij robuust te zijn voor massa- en ladingsveranderingen van de nucleus, omdat er slechts enkele stabiele toestanden bestaan voor zo'n systemen. Vandaar dat de overeenkomst voor kleinere aggregaten nagenoeg identiek is. Grotere aggregaten bleken echter zeer afhankelijk te zijn van de parameterkeuze o.w.v. hun groot aantal metastabiele toestanden, waardoor een kleine parameterwijziging reeds aanleiding kan geven tot de vorming van andere stabiele configuraties.

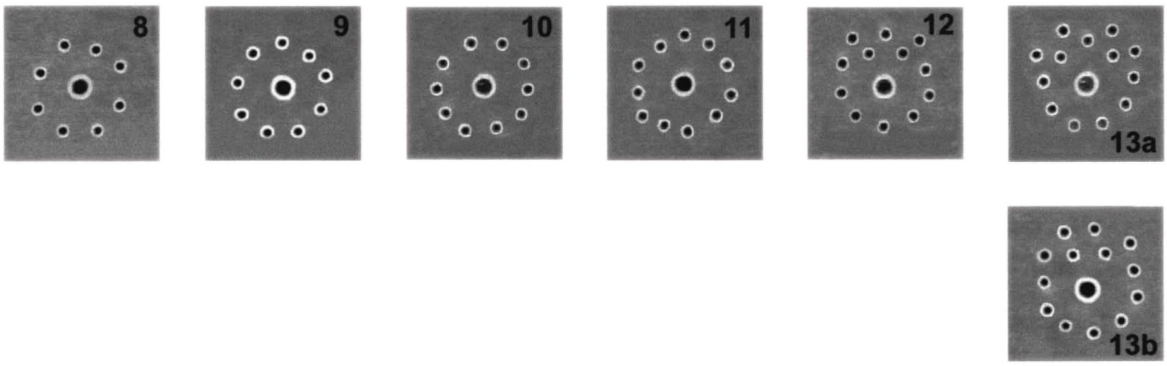
****

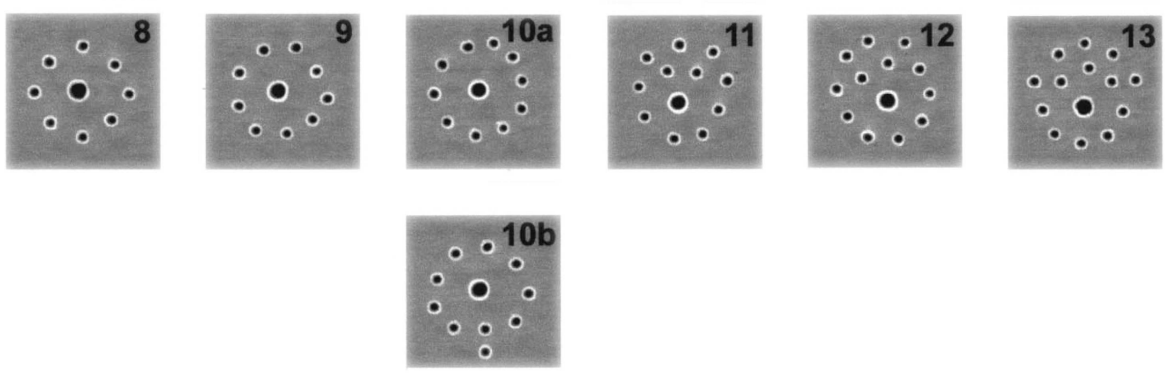

2
3
4
5a
6a
7a
5b
6b
7b

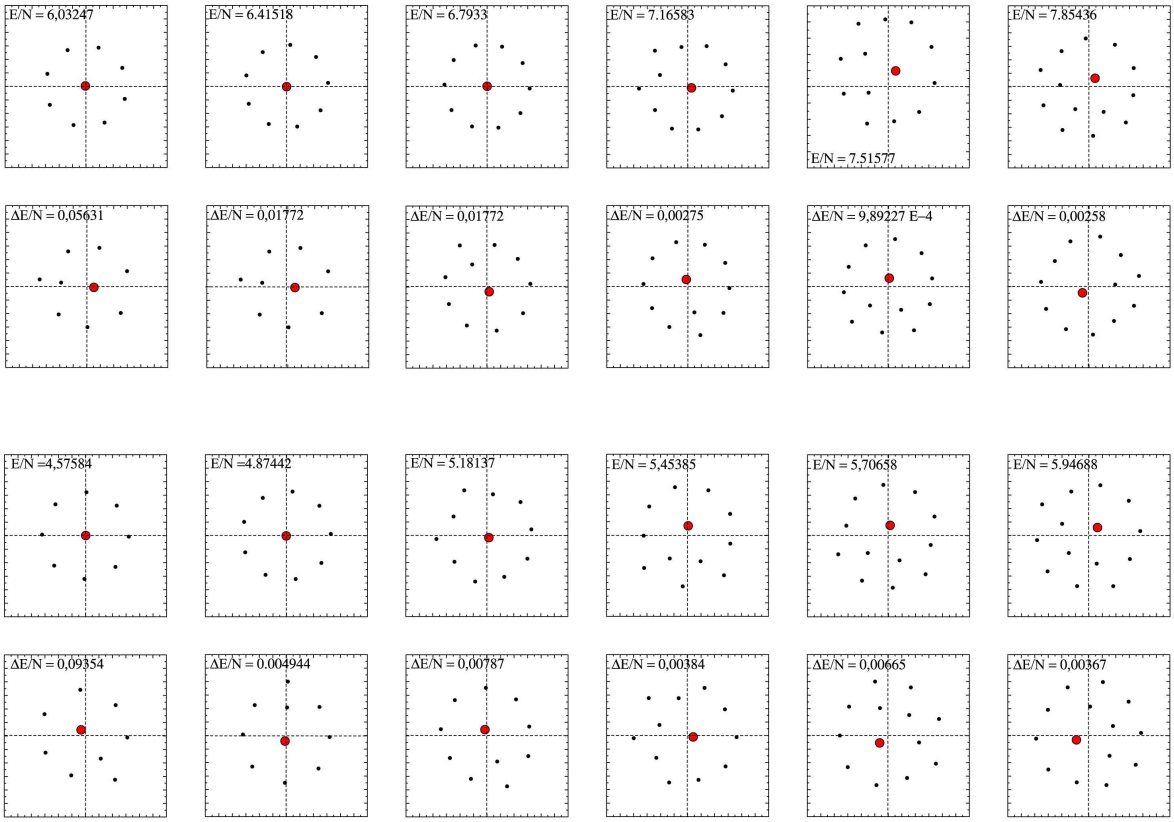

2
3
4
5
6a
7a
6b
7b

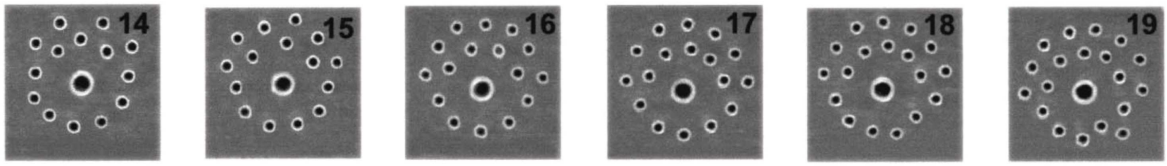

E/N = 3,14134
E/N = 3,78809
E/N = 4,33346
E/N = 4,82515
E/N = 5,24568
E/N = 5,64359
ΔE/N = 0,00818
ΔE/N = 0,04872
ΔE/N = 0,06167

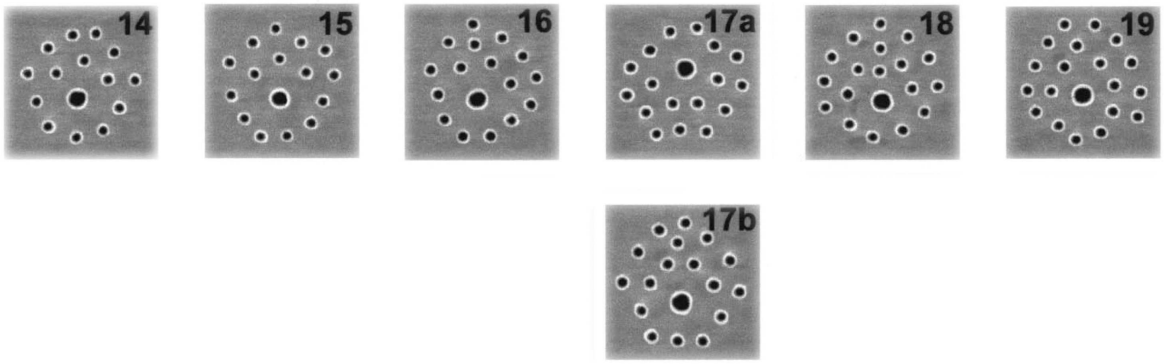

E/N = 2,47461
E/N = 2,94795
E/N = 3,35867
E/N = 3,72678
E/N = 4,0051
E/N = 4,28661
ΔE/N = 0,00454
ΔE/N = 0,10809
ΔE/N = 0,13509

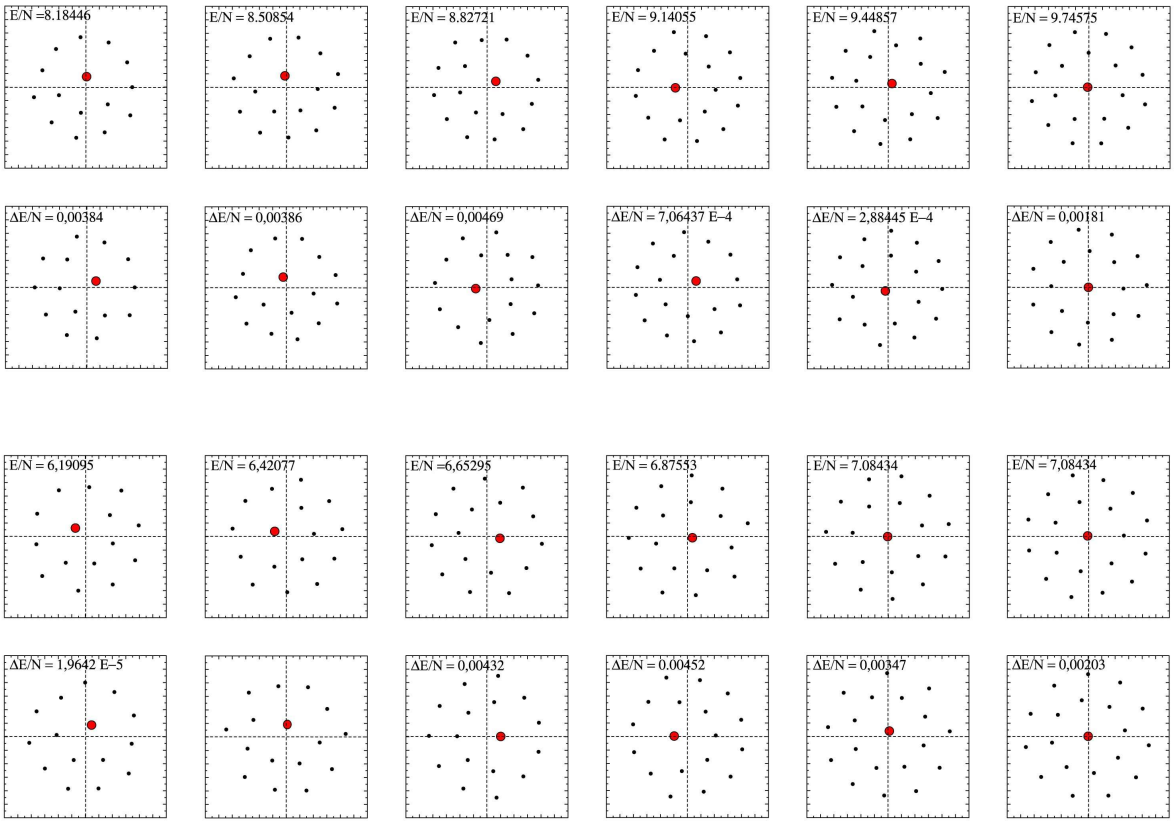

8
9
10
11
12
13a
13b

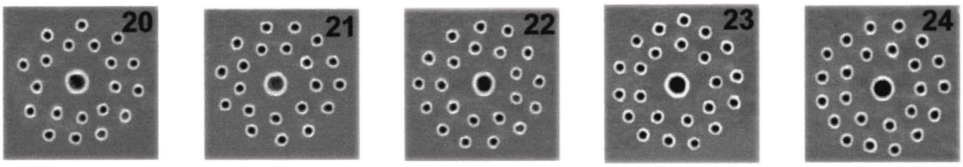

8
9
10a
11
12
13
10b

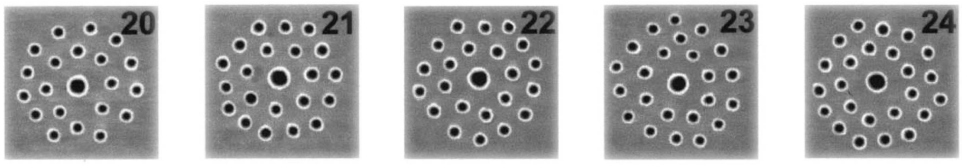

E/N = 6,03247
E/N = 6.41518
E/N = 6.7933
E/N = 7.16583
E/N = 7.51577
E/N = 7.85436
ΔE/N = 0,05631
ΔE/N = 0,01772
ΔE/N = 0,01772
ΔE/N = 0,00275
ΔE/N = 9,89227 E−4
ΔE/N = 0,00258
E/N =4,57584
E/N =4.87442
E/N = 5.18137
E/N = 5,45385
E/N = 5,70658
E/N = 5.94688
ΔE/N = 0,09354
ΔE/N = 0.004944
ΔE/N = 0,00787
ΔE/N = 0,00384
ΔE/N = 0,00665
ΔE/N = 0,00367

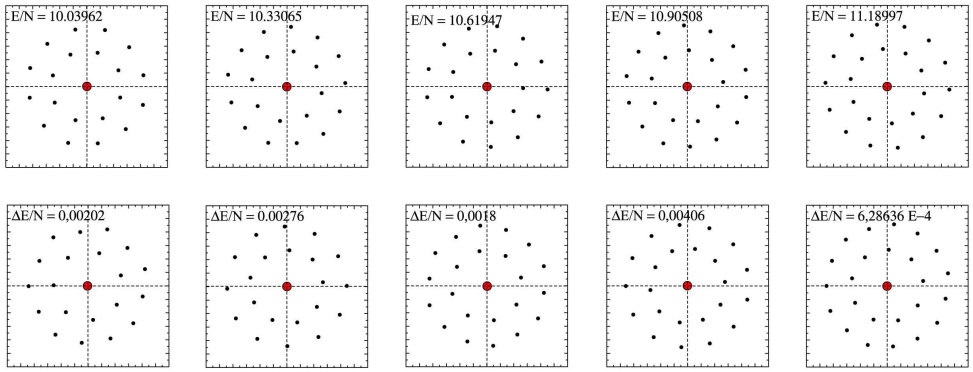

14
15
16
17
18
19

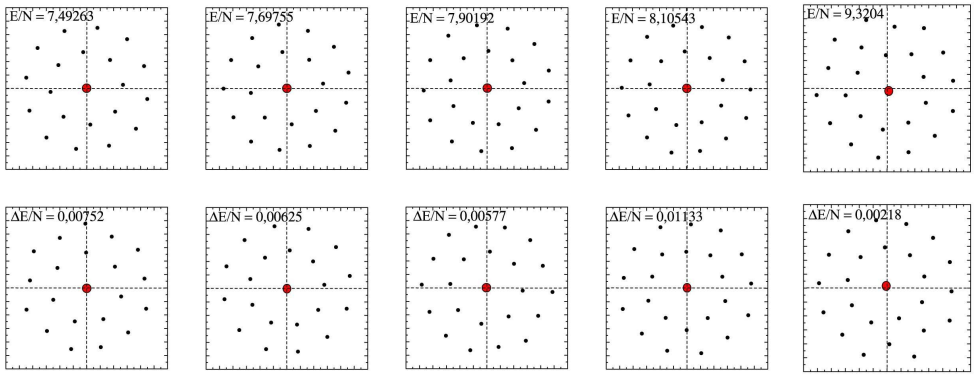

14
15
16
17a
18
19
17b


E/N =8.18446
E/N = 8.50854
E/N = 8.82721
E/N = 9.14055
E/N = 9.44857
E/N = 9.74575
ΔE/N = 0,00384
ΔE/N = 0,00386
ΔE/N = 0,00469
ΔE/N = 7,06437 E−4
ΔE/N = 2,88445 E−4
ΔE/N = 0,00181
E/N = 6,19095
E/N = 6,42077
E/N =6,65295
E/N = 6.87553
E/N = 7.08434
E/N = 7,08434
ΔE/N = 1,9642 E−5
ΔE/N = 0,00432
ΔE/N = 0.00452
ΔE/N = 0,00347
ΔE/N = 0,00203


20
21
22
23
24


20
21
22
23
24


E/N = 10.03962
E/N = 10.33065
E/N = 10.61947
E/N = 10.90508
E/N = 11.18997
ΔE/N = 0,00202
ΔE/N = 0.00276
ΔE/N = 0,0018
ΔE/N = 0,00406
ΔE/N = 6,28636 E−4


E/N = 7,49263
E/N = 7,69755
E/N = 7,90192
E/N = 8,10543
E/N = 9,3204
ΔE/N = 0,00752
ΔE/N = 0,00625
ΔE/N = 0,00577
ΔE/N = 0,01133
ΔE/N = 0,00218

3.1.3 Vergelijking theorie - experiment

Kwalitatieve regels die de organisatie van artificiële atomen beschrijven

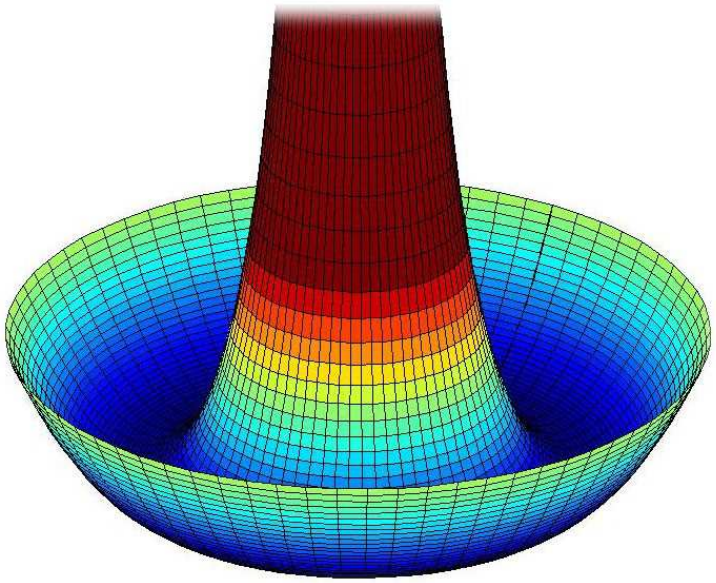
In ref. [9] worden vanuit het experiment een aantal kwalitatieve regels geformuleerd voor de organisatie van artificiële atomen. Hieronder volgt een verklaring voor deze regels vanuit onze theoretisch bevonden resultaten.

(1) Het grootste schijfje (de nucleus) bezet de centrale positie in het centrum van de roterende magneet.

Door het feit dat het eerste deel van de reeds eerder beschreven Hamiltoniaan nul is voor het deeltje dat de centrumpositie bezet, zal de energiewinst voor het grootste deeltje het grootst zijn.

(2) Kleinere schijfjes organiseren zich in schillen rond de grote schijf.

Uit de configuraties beschreven in ref. [4] ziet men dat de elektronen zich steeds gaan organiseren in schillen rondom het centrum van de inperkingspotentiaal. Dit zal ook het geval zijn voor aritificiële atomen van het moment dat de massa van de nucleus relatief gezien t.o.v. de lading voldoende groot is om de centrumpositie te bezetten. Onderstaande grafiek illustreert het energielandschap voor 1 elektron als één nucleus de centrumpositie bezet. Intuitief voelt men aan dat, indien de nucleus de centrumpositie bezet, de elektronen zich in schillen zullen organiseren rondom de nucleus.



Figuur 3-1: Energielandschap voor een electron als één nucleus zich in het centrum van de inperkingspotentiaal bevindt.

(3) Hoe groter de omvang van de nucleus t.o.v. de elektronen, hoe simpeler de morfologie van aggregaten.

Als we terugblikken op de fasediagrammen zien we dat als de massa relatief groot is t.o.v de lading, de nucleus altijd de centrumpositie zal bezetten. Dus hoe groter de massa-ladingsverhouding, hoe symmetrischer, en dus minder complex, de configuratie zal zijn.

(4) Schillen worden consequent opgevuld, i.e. de tweede schil vult zich enkel indien de eerste schil volledig is opgevuld.

Vergelijkend met onze resultaten zien we dat inderdaad eerst de eerste schil opgevuld wordt tot 10 elektronen voordat een tweede schil opgevuld wordt.

(5) Indien de omvang niet te groot is, kan de bezetting van de schillen voorspeld worden aan de hand van simpele geometrische overwegingen.

In het experiment werd aangehaald dat de polynoommethode gebruikt kan worden om de bezetting van de schillen te voorspellen. In de polynoommethode wordt de morfologie voorspeld door de elektronen op de hoekpunten van regelmatige veelhoek te plaatsen voor systemen met een beperkt aantal elektronen. Dit is inderdaad zo, maar de grondtoestand zal steeds in grote mate afhankelijk zijn van de massa en lading van de nucleus. Dit blijkt duidelijk uit de fasediagrammen in voorgaand hoofdstuk. De polynoommethode geeft dus een indicatie voor een mogelijke configuratie, maar ook niet meer dan dat. In de fasediagrammen in voorgaand hoofdstuk zagen we dat de helling tussen de clusterconfiguratie en de gesloten ringconfiguratie afneemt met stijgend aantal elektronen.

(6) Gesloten schilstructuren zijn stabieler dan openschilstructuren.

Dit is enkel waar voor bepaalde gebieden in het fasediagram. Uit de fasediagrammen blijkt duidelijk dat open schilstructuren zelfs de grondconfiguratie kunnen zijn. In het deel van het fasediagram waarin het experiment valt is dit inderdaad zo.

Afhankelijkheid configuratie van de rotatiesnelheid/interactiekracht

In het experiment werd de hydrodynamische repulsie tussen de spinnende schijfjes verhoogd door de rotatie snelheid te verhogen. Daardoor werd de afstand tussen de schijfjes en dus de grootte van het aggregaat verhoogt evenredig met ω . Er werden drie verschillende types van herorganisatie vastgesteld, nl. :

1. Een schijfje kan naar een hogere schil promoveren,

2. Een schijfje kan naar een lagere schil promoveren,
3. Een atoom kan zijn geometrie behouden.

De experimentele resultaten worden getoond in onderstaande tabel. De notatie *(k,l)* betekent dat de binnenste ring *k* elektronen bevat en de buitenste (open) ring *l*. Een exacte overeenkomst met onze simulaties is er niet, maar de configuraties zijn zeer gelijkaardig. Bovendien zien we dat deze regels ook zonder uitzondering toepasbaar zijn op de configuraties bekomen aan de hand van onze Monte Carlo-simulaties. De verlaagde interactie in ons geval werd bereikt door de $1/r^2$-interactie (korte dracht) te vervangen door een Coulomb-repulsiekracht (lange dracht).

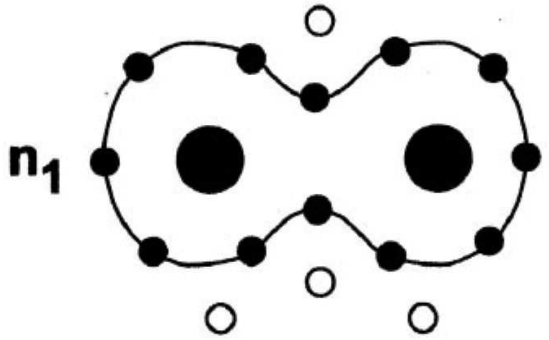
Experiment				**Gesimuleerd**	
n	400 rpm	600 rpm	800 rpm	Coulomb	$1/r^2$
1	1	1	1	1	1
2	2	2	2	2	2
3	3	3	3	3	3
4	4	4	4	4	4
5	5	5	5	5	5
6	6	6	6	6	6
7	7	7	7	7	7
8	8	8	8	8	8
9	9	9	9	9	9
10	10	10	10	10	10
11	11	10,1	10,1	9,2	8,3
12	9,3	10,2	10,2	9,3	8,4
13	9,4	9,4	10,3	8,5	8,5
14	(9,5),(10,4)	10,4	(10,4),(11,3)	9,5	9,5
15	9,6	9,6	9,6	9,6	9,6
16	9,7	10,6	10,6	10,6	9,7
17	10,7	10,7	9,8	9,8	10,7
18	10,8	10,8	9,9	8,10	7,11
19	10,9	10,9	9,10	7,12	7,12
20	9,11	9,11	9,11	8,11	8,11
21	9,12	9,12	9,12	8,13	8,13
22	9,13	9,13	9,13	9,13	9,13
23	9,14	9,14	9,14	9,14	9,14

24	9,15	9,15	9,15	10,14	10,14

tabel 1: Overzicht van de geobserveerde morfologie van de atomen (met grootste nucleus) bij verschillende rotatiesnelheid en de gesimuleerde morfologieën bij verschillende interactiekracht. De notatie x,y staat respectievelijk voor binnenste en buitenste schil van elektronen.

3.2 Klassieke artificiële moleculen

Na de studie van de artificiële atomen werden ook systemen met twee (grote) nuclei bestudeerd, wat we verder artificiele moleculen zullen noemen. Fig.??? toont de geobserveerde experimentele configuraties, samen met de theoretisch bepaalde. In de simulaties werd de 1/r2 interactiepotentiaal gebruikt. Dezelfde waarde voor *m/M* en *q/Q* als voor de systemen met één nucleus werden gebruikt. Fig. ??? maakt duidelijk hoe de configuraties genoteerd worden: de n_1 zwarte elektronen vormen de eerste schil.



Figuur 3-2: Voorstelling van de binnenste schil.

In het experiment zijn twee regels opgesteld die de opbouw van de configuraties beschrijven. Deze regels worden hieronder zullen toegelicht.

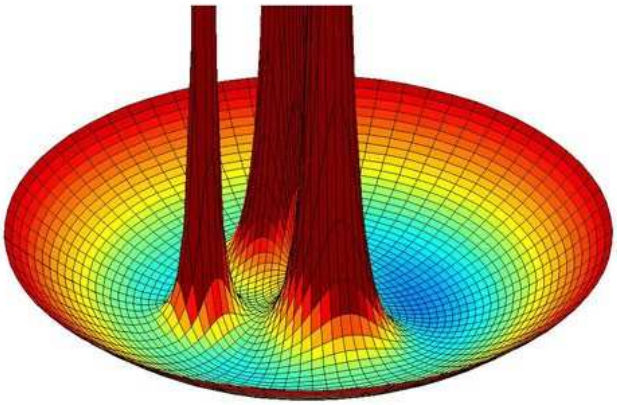
Voor n < 9:

(1) De smalle schijfjes bezetten regio's aan beide zijdes van de gepaarde nuclei en vormen er clusters.

De nuclei zullen de centrumpositie willen bezetten omdat dit in verhouding met de elektronen tot een grotere energiewinst leidt. Deze nuclei zullen een potentiaalbarrière vormen die het faselandschap verdeelt in twee gebieden. Hierdoor kunnen elektronen onmogelijk van het ene gebied naar het ander bewegen en worden er clusters gevormd aan beide zijde van de as met de nuclei.

(2) De as waar de twee nuclei op gelegen zijn, zijn vrij van kleine schijfjes, omdat de stromingsveld t.g.v. de nucleus hier het grootst is waardoor bijgevolg de repulsie tussen nuclei en elektronen het grootst is.

In onderstaande figuur is het theoretisch resultaat geplot van een artificiële molecule bestaande uit twee nuclei en twee elektronen. De energie van één van de elektronen is geplot in functie van de positie. Men ziet duidelijk dat de nuclei het fase-landschap verdelen in twee gebieden en de as waarop de nuclei gelegen zijn, een potentiaalbarrière vormen tussen beide gebieden. Hierdoor gaat het onmogelijk zijn een stabiele configuratie te vormen met elektronen gelegen op deze nuclei-as.



Figuur 3-3: Energielandschap van een elektron in een di-atomisch molecuul met 2 elektronen.

(3) De afstand tussen de schijfjes is ruw genomen constant.

Door de nuclei zullen er sub-potentiaalputten ontstaan aan beide zijde van de as van de nuclei. De elektronen zullen zich gaan positioneren in deze potentiaalputten in een geordende structuur. Deze geordende structuur is te wijten aan de regelmatige vorm van deze potentiaal putten.

(4) De clusters hebben een spiegelsymmetrie.

De spiegelsymmetrie ontstaat door de ellipsvormige vorm van de sub-potentiaalputten. Hierdoor zal er geen spraken zijn van cirkelsymmetrie maar wel spiegelsymmetrie.

Voor 11 < n < 26:

Indien men het aantal elektronen blijft verhogen zal op een gegeven moment de potentiaalbarrière die de faseruimte in twee verdeelt, opgeheven worden. Hierdoor zullen de elektronen zich niet meer organiseren in clusters, gelegen aan beide zijden van de nuclei-as, maar zal de grondtoestand bereikt worden in een gesloten configuratie. In ref. [9] werden een aantal regels opgesteld die hieronder getoetst worden aan de theoretisch bevonden resultaten.

(1) De binnenste schil is altijd gesloten en heeft n_1 = 10 - 13 schijfjes, n_1 stijgt gestaag met n.

Theoretisch vinden we dat de binnenste schil altijd gesloten is, maar met n_1 = 10 – 12. Dit verschil is waarschijnlijk te wijten aan het feit dat het in de parameterruimte heel moeilijk is om de juiste parameterfit te vinden tussen theorie en experiment. Een tweede oorzaak kan liggen in het feit dat de ronde schijfjes niet oneindig klein zijn en daardoor lichte afwijkingen gaan vertonen ten opzichte van de theoretische resultaten.

(2) Er zijn nooit meer dan zeven schijfjes in een cluster.

Dit is in overeenstemming met de theoretisch bekomen resultaten. Door de nuclei ontstaat er aan beide zijden van deze nuclei-as een ellipsvormige sub-potentiaalput. Indien er echter teveel elektronen in deze potentiaalputten geplaatst worden zal deze als het ware overlopen waardoor organisatie van elektronen in een cluster beperkt is tot zeven. Drijft men het aantal elektronen verder op, dan zullen deze zich elders gaan positioneren.

Voor 26 < n < 32:

Deze configuraties zijn onstabiel. De buitenste schil slipt constant t.o.v. de binnenste schil.

Omdat theoretisch een statisch model gesimuleerd is en in het experiment men te doen heeft met een dynamisch systeem zullen deze systemen lichtjes verschillen. In de simulaties vindt men wel stabiele configuraties. De verschillende metastabiele configuraties zullen hier echter slechts gescheiden zijn door een lage potentiaalbarrière. Hierdoor zal in het experiment de potentiaalbarrières tussen deze metastabiele toestanden niet voldoende zijn om slip tegen te gaan.

Voor 32 < n < 35:

Deze systemen vormen stabiele symmetrische aggregaten.

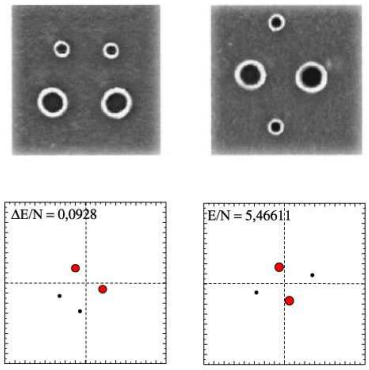
Dit is cf. de simulaties.

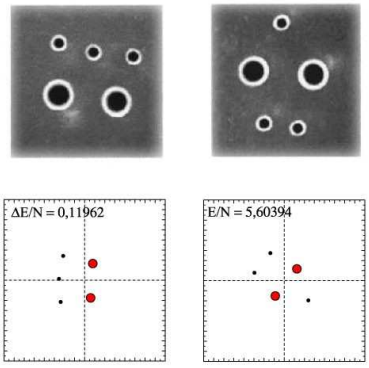
Voor n>34 vindt men experimenteel geen stabiele configuraties meer. De afmeting van de molecule is te groot geworden waardoor niet alle elektronen ingevangen worden.

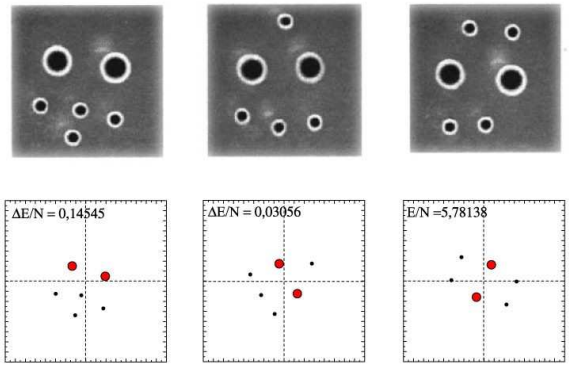
3.3 Conclusie

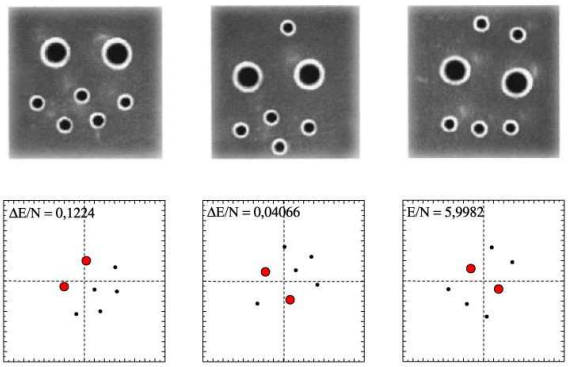
Voor zowel het experiment als de theoretisch bekomen resultaten zal de organisatie van de aggregaten bekomen worden door de competentie tussen aantrekkings- (de parabolische inperkingspotentiaal) en afstotingsinteractie. Ondanks de goede overeenkomst tussen theorie en experiment zijn er toch enkele verschilpunten. Zo is er geen perfecte harmonische inperking t.g.v. het magneetveld in het experiment en is het experimenteel systeem een dynamisch systeem in tegenstelling tot een statisch theoretisch systeem. Ook is het moeilijk om te komen tot een goede parameterfit tussen theorie en experiment. Het experiment geeft dus een zeer goede indicatie hoe klassieke artificiele atomen en klassieke artificiële moleculen zich gaan gedragen en omgekeerd kunnen we aan de hand van simulaties zeer snel voorspellen hoe een systeem, gelijkaardig aan het experiment, zich zal gaan gedragen.
Er zijn tal van toepassingen voor dergelijke systemen zoals onder anderen zelf-organisatie, waardoor deze systemen naar de toekomst toe zeker een interessant onderzoeksonderwerp zullen blijven.

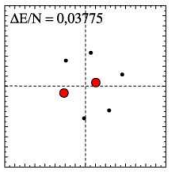
Tenslotte wil ik nog vermelden dat naar analogie met CAA's de termen "nucleus" en "elektronen" werden gebruikt om respectievelijk de grote schijven en kleine schijfjes te beschrijven. Deze benaming heeft eerder een betekenis in de nomenclatuur dan in de fysica.

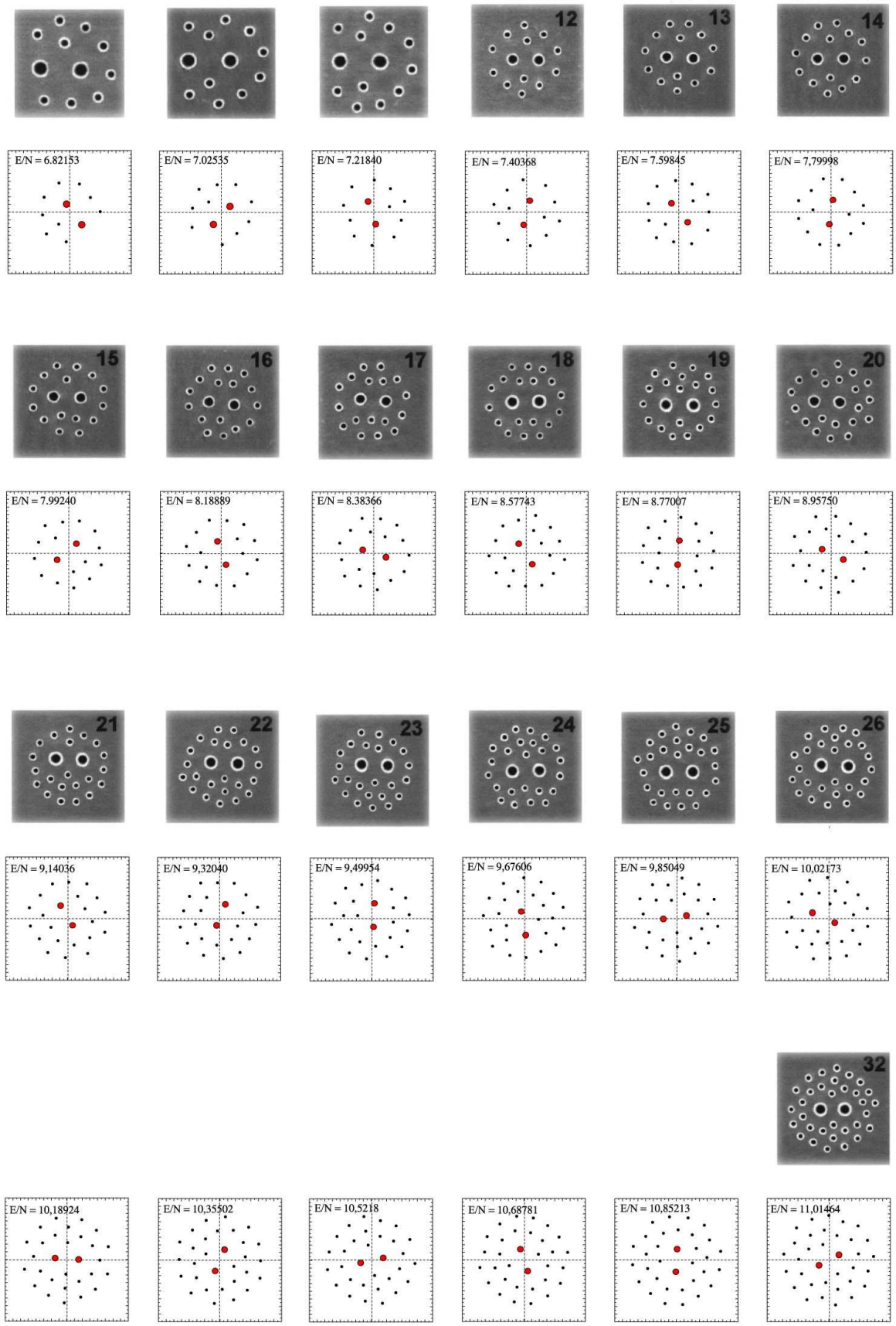

ΔE/N = 0,0928
E/N = 5,46611

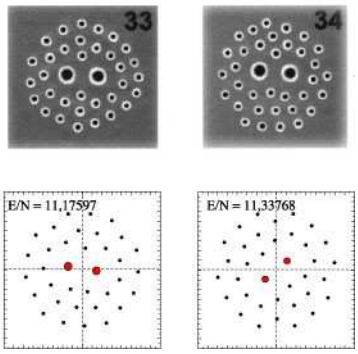

ΔE/N = 0,11962
E/N = 5,60394


ΔE/N = 0,14545
ΔE/N = 0,03056
E/N =5,78138


ΔE/N = 0,1224
ΔE/N = 0,04066
E/N = 5,9982


ΔE/N = 0,03775


12
13
14
E/N = 6.82153
E/N = 7.02535
E/N = 7.21840
E/N = 7.40368
E/N = 7.59845
E/N = 7,79998
15
16
17
18
19
20
E/N = 7.99240
E/N = 8.18889
E/N = 8.38366
E/N = 8.57743
E/N = 8.77007
E/N = 8.95750
21
22
23
24
25
26
E/N = 9,14036
E/N = 9,32040
E/N = 9,49954
E/N = 9,67606
E/N = 9,85049
E/N = 10,02173
32
E/N = 10,18924
E/N = 10,35502
E/N = 10,5218
E/N = 10,68781
E/N = 10,85213
E/N = 11,01464


33
34
E/N = 11,17597
E/N = 11,33768

Conclusies

In deze thesis werd de invloed van een defect nagegaan in een 2D-systeem bestaande uit identieke deeltjes aan de hand van de klassieke mechanica. Deze deeltjes werden opgesloten door een parabolische inperkingspotentiaal. Zo'n systeem wordt een artificieel 2D-atoom genoemd.
In deze thesis werd het gedrag van systemen met zowel Coulomb- als $1/r^2$-interactie besproken. Alle resultaten zijn algemeen geldend voor afstotende identieke deeltjes met één of twee defecten, voor de eenvoud is in het verloop van deze thesis steeds gesproken over de nucleus, als synoniem van het defect, en de elektronen. De naamgeving van het defect heeft echter geen fysische betekenis.

In hoofdstuk 2 werd een harmonische inperkingspotentiaal en Coulomb-afstoting verondersteld. De invloed van de massa en lading van de nucleus werd nagegaan op de grondtoestand aan de hand van fasediagramen van een 3-,4-,5-,6- en 7-elektronensysteem. Tevens werd er nagegaan op welke wijze er overgaan werd van een metastabiele naar de grondtoestand. Voor het vinden van zowel de metastabiele toestanden als grondtoestand van een systeem werd gebruik gemaakt van Monte Carlo-simulatie aangevuld met een Newton optimalisatie techniek. Hieruit konden we concluderen dat er drie type-structuren mogelijk zijn, nl de clusterconfiguratie waarbij de elektronen zich organiseren in een cluster langs de nucleus, de open ringstructuur waarbij de elektronen zich rond de nucleus bevinden maar geen gesloten ring vormen en de gesloten ringstructuur waarbij de elektronen zich organiseren en gesloten schillen rond de nucleus. Ook werd een benaderend lineair verband gevonden van de fasegrens tussen de cluster- en gesloten ringconfiguratie, indien de lading van de nucleus groter dan één was. Als laatste werd een toenemende complexiteit van het faselandschap vastgesteld bij toenemend aantal elektronen, waardoor de morfologie van het systeem zeer afhankelijke werd van de massa en lading van de nucleus.

Hoofdstuk 3 handelt over een vergelijkende studie tussen een experimenteel gerealiseerd systeem gedaan aan de universiteit van Harvard [9] en een eigen gesimuleerd systeem. Dit experimenteel systeem bestond uit een aantal vlottende ronde magneetjes die naar het centrum aangetrokken werden door een roterend magnetische veld en van elkaar afgestoten door een hydrodynamische kracht. Hierbij werden één of meerdere deeltje's met grotere diameter toegevoegd, wat in de nomenclatuur zal fungeren als nucleus. Systemen met twee nuclei werden artificiële moleculen genoemd. De hydrodynamisch kracht is het equivalent van een $1/r^2$-interactie. Deze zal vergeleken worden met een theoretisch systeem met zowel Coulomb- als $1/r^2$-interactie.
Ondanks de goede overeenkomst tussen theorie en experiment stelden we toch kleine verschillen vast. Dit is te wijten aan de experimentele opstelling van het experiment en een moeilijke parameterfit tussen experiment en theorie. Zo is er geen perfecte harmonische inperking t.g.v. het magneetveld in het experiment en is het experimenteel systeem een dynamisch systeem in tegenstelling tot een statisch theoretisch systeem. Het experiment geeft dus een zeer goede indicatie hoe klassieke artificiele atomen en klassieke artificiële moleculen zich gaan gedragen en omgekeerd kunnen we aan de hand van simulaties zeer snel voorspellen hoe een systeem, gelijkaardig aan het experiment, zich zal gaan gedragen.

In de inleiding werd reeds gesproken over een aantal experimenteel gerealiseerde systemen deze correspondeerden met deze gevonden in [1]. Deze vaststelling kan alleen maar bevestigd worden door deze thesis en is hopelijk een goede stimulans voor verder studies.

.