

A T046868 projekt során elért eredmények ismertetése:

Pályázatunk kutatásai részben a korábban befejezett *Hierarchikus bonyolultság kiterjedt és kölcsönható elektronrendszerekben* című, T032116 számú OTKA pályázat során elért eredményekhez kapcsolódnak. Kutatásaink arra irányultak, hogy a nagy kiterjedésű és bonyolult szerkezetű elektroneloszlásokat hogyan lehet egyszerű rekurzív lépések egymás utáni sorozataként leírni. Ezt egy viszonylag új alkalmazott matematikai eredmény segítségével tehetjük meg, ugyanis a Hilbert-tereknek léteznek olyan hierarchikus bázisrendszerei, amelyek a leírás finomságának, felbontásának egymásra épülő szintjét alkotják. A hullámfüggvényeknek az ilyen típusú dekompozícióját „többszörös felbontású analízisnek” (multiresolution analysis, MRA), vagy „wavelet analízisnek” nevezik. Az ilyen felbontások előnyösen alkalmazhatók amiatt, hogy a rendszerek durva, átlagtér leírása sok esetben már megfelelő eredményekhez vezet, sőt az eloszlások részleteinek hozzávétele a pontosságon általában javítani szokott. Ez azonban az ilyen típusú bázisrendszerek alkalmazásának csak egyik – bár nagyon lényeges – előnye. Különlegesen fontos az a tény, hogy a wavelet analízis lehetővé teszi olyan bázisfüggvények használatát, amelyek a térben szigorúan lokalizáltak.

Ezt a kérdéskört tárgyalja a pályázat beadása után, de még elnyerése előtt írt „*Local expansion of N-representable one-particle density matrices yielding a prescribed electron density*” publikációnk. A lokális tulajdonságok segítségével sikerült olyan sűrűségoperátorokat előállítanunk, amelyek tükrözik az elektron korrelációt és egyben biztosított az is, hogy előállíthatók olyan antiszimmetrikus N -elektron hullámfüggvényből, ahol az elektronsűrűség egy előre megadott eloszlás. Ilyen sűrűségoperátorok a sűrűségfüggvény elméletben használatos Lieb-féle funkcionálok számításánál alapvető szerepet játszanak. A lokális előállítás folyamánként sikerült azt is bizonyítanunk, hogy az az elterjedt vélekedés, miszerint az egzakt kinetikus energia funkcionál a Weizsäcker kifejezéstől a részecske statisztika miatt tér el, nem állja meg a helyét. Lehetséges volt ugyanis olyan – a Pauli-elvet kielégítő – sűrűségoperátort előállítani, amely egzaktul a Weizsäcker-féle kinetikus energia funkcionálhoz vezet.

Ezeket a kutatásokat folytatva az alkalmazások szempontjából fontos kérdéseket vizsgáltunk meg. A numerikus számítások során az elektron rendszerek sűrűségoperátorának, ill. hullámfüggvényének pontosságát rekurzív lépések segítségével egyre javítjuk, miközben a kifejtéshez egyre finomabb rácson definiált wavelet bázisfüggvényeket adunk hozzá. Az elképzelés naiv alkalmazása azonban numerikusan kezelhetetlen algoritmusokhoz vezet, tekintettel arra, hogy a felbontás finomításával az újonnan belépő bázisfüggvények száma exponenciálisan nő. A *J. Chem. Phys.* folyóiratnál megjelent „*Adaptive local refinement of the electron density, one-particle density matrices and electron orbitals by hierarchical wavelet decomposition*” című munkánkban azonban megmutattuk, hogy a rács finomítását nem szükséges a tér minden tartományában egyenletesen elvégezni, hanem csak azokon a helyeken, ahol az elektronszerkezet különösen részlet gazdag. Jellegzetesen ilyen tartomány a magok körüli csúcs (cusp) környéke. Az aszimptotikus tartományokban, ill. a kémiai kötések helyén a leírás nagy precizitással megvalósítható meglepően durva rácsok segítségével is, és így sikerült a rendszer pontos leírásához szükséges bázisfüggvények számát a numerikusan kezelhető határokon belül tartani. Ha ugyanis a sűrűségfüggvény-elméletből ismert egy- és kételektron-sűrűségmátrixok wavelet alapú kifejtését alkalmazzuk, a kinetikus és az elektron-elektron kölcsönhatási energia kifejezésekor fellépő kételektron-integrál jellegű tagok univerzálisak, rendszertől függetlenek lesznek. Az atomi sűrűségek kifejtésének lokális finomítása során egy és három dimenzióban a szükséges waveletek száma a rendszám logaritmusával skálázódik.

A pályázat kutatásainak eredményeképpen született az egyik résztvevő (Nagy Szilvia) angol nyelvű doktori értekezése is „*Wavelet Based Density Matrices, Electron Density and Energy Functionals*” címmel, amelynek védele a Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem Természettudományi Karán, 2005. augusztus 9-én történt. Ebben részletesen megvizsgálta, hogy a változó felbontású vagy wavelet analízis (MRA) alkalmazásával milyen technikai egyszerűsítések, ill. elvi jellegű értelmezések kaphatók a kiterjedt elektronrendszerek sűrűség és sűrűségfüggvények alapú leírásában. A dolgozat összefoglaló jellegű, benne korábbi évek eredményei is szerepelnek.

Numerikusan jól ismert, hogy az elektron-elektron kölcsönhatás figyelembe vétele a precíz elektronszerkezeti számításokban elkerülhetetlen. Ezt a tényt – amely elektron korreláció néven ismert a kvantumkémiai, szilárdtest fizikai irodalomban –, mi is vizsgáltuk a fent említett első publikációban. Matematikailag az elektron korreláció az antiszimmetrikus hullámfüggvényeknek olyan szerkezetében mutatkozik meg, amely egy egyszerű Slater-determináns segítségével történő reprezentáción túlmutat. Ugyanezt a fogalmat a manapság robbanásszerűen fejlődő kvantum információelméletben „összefonódás” néven említik. Megkülönböztethető részecskék esetén a kvantum összefonódottság intenzíven kutatott terület. Megkülönböztethetetlen fermionok esetén azonban a hullámfüggvény antiszimmetriája olyan összefonódottságnak tűnő leíráshoz vezet, melynek fizikai tartalma egy-determináns állapotok esetében nincsen. Valódi összefonódottságot akkor észlelünk, ha a hullámfüggvény nem hozható Slater-determináns alakra. Az „*An elementary formula for entanglement entropies of fermionic systems*” című cikkünkben az antiszimmetrikus állapotok összefonódottságának mértékét Neumann- és Rényi-entrópiák segítségével vizsgáltuk. A számításokat két-elektron rendszerekre felírt modell sűrűségoperátorokkal végeztük a Schmidt-dekompozícióhoz hasonló Slater-dekompozíció felhasználásával, amely esetben sikerült egzakt eredményeket kapnunk. Megmutattuk azt is, hogy általános esetben (a hullámfüggvény szimmetriájára kikötést nem téve) az entrópiák a 0 és 2 érték között mozognának, azonban az antiszimmetria megkötése az entrópiákra 1 alsó korláthoz vezet. Az állítás ugyan más speciális összefüggésben már korábban is ismert volt, azonban mi mutattuk meg, hogy az általános Pauli-elv következtében ez a határ a hullámfüggvények ún. N -reprezentálhatóságának szigorú következménye. Rámutattunk az $S_{\min}=1$ összefüggés egy érdekes geometriai interpretációjára is.

Az ion–kondenzált anyag (fém) kölcsönhatás elméleti tárgyalására alkalmazott módszerekben alapvető fontosságú az elektrongáz párkorrelációs függvénye. A Phys. Rev. B folyóiratban megjelent „*Spin-resolved pair-distribution functions in an electron gas: A scattering approach based on consistent potentials*” cikkünkben a szóráselméletet használva meghatároztuk egy homogén elektron gáz párkorrelációs függvényét és annak parallel, valamint anti-parallel spinű elektronokra vonatkozó összetevőit. Az eljárás a normalizációs integrálokra és a két-részecskés sűrűségoperátor sajátfüggvényeit alkalmazó geminál reprezentáción alapul. A relatív mozgás szerepét konzisztens potenciálokra keresztül a megfelelő Schrödinger-egyenlettel írtuk le a folytonos spektrumban.

A fenti rendszerekre a sűrűségfüggvény formalizmus (DFT) sok esetben jó eredményeket ad. A DFT keretében vizsgáltunk olyan kérdéseket, hogy az elektrongázba helyezett külső töltés (nehézion vagy elektron) mennyiben módosítja az eredeti töltéseloszlást. A „*Nonlinear screening and stopping power in two-dimensional electron gases*” publikációban önkonzisztens eljárást fejlesztettünk ki pontszerű nehéz töltések két-dimenziós elektrongázbeli árnyékolására. Az eljárás a DFT Kohn-Sham-egyenletein alapul, lokális közelítéssel az effektív egyrészecskés potenciál ún. kicserélődési-korrelációs tagjára.

Kvantummechanikai, parciális hullámokon alapuló szóráselméleti módszert is használtunk az árnyékolás hatásainak vizsgálatára a „*Transport cross sections based on a screened interaction*”

potential: Comparison of classical and quantum-mechanical results” című cikkben. Ebben megvizsgáltuk és behatároltuk a klasszikus ($\hbar=0$), impakt paraméteres leírás teljesítőképességét árnyékolt potenciálra számolt transzport hatáskeresztmetszet vonatkozásában.

Elemeztük a dimenzió ($3 \rightarrow 2 \rightarrow 1$) szerepét is szóráselméleti, fizikailag motivált árnyékolási és kölcsönhatási problémákban („*Changes in non-linear potential scattering theory in electron gases brought about by reducing dimensionality*”).

Az elektronkorrelációt a Hartree-Fock-közelítésen túlmenő korrekcióként felfogó szemléletben az effektív párkölcsönhatást és geminál közelítést alkalmazva meghatároztuk nagysűrűségű elektrongáz párkorrelációs függvényét a Hartree-Fock-eljáráshoz adódó következő rendben a „*Calculation of pair-correlations in a high-density electron gas: Constraints for effective interparticle potentials*” című közleményben.

Az elektron sűrűség eloszlások különböző szempontok szerint végzett analízise a kutatási terv egyik súlypontját képviseli. A későbbi felhasználások, közelítések szempontjából különösen fontos, ha az elektron sűrűség analitikus tulajdonságairól pontos kijelentéseket tehetünk. Az ilyen állítások, tételek a kölcsönható sokrészecskés rendszerek esetében sokszor nehezen található meg. Egy ebben a kérdéskörben elért új eredményt publikáltunk a „*Curvature of the total electron density at critical coupling. Attractive impurity in an electron gas*” című közleményben. Ebben egy elektrongázba helyezett vonzó töltés esetére megmutattuk, hogy a sűrűség második deriváltja (curvature) analitikus függvénye a csatolási állandónak, még abban az esetben is, ha egy új kötött állapot jelenik meg a folytonos spektrum állapotai mellett. A bizonyításhoz egy matematikai tétel felállítására is szükség volt.

A kétdimenziós elektrongázok jellemzése a kutatási projektben kiemelt szerepet játszott. Két dimenzióban a kötött állapotok megjelenése fontos és nem könnyen tárgyalható probléma. Fizikailag motivált, kétdimenziós árnyékolt potenciálokra részletesen elemeztük ezt a kérdést a „*Numerical study of bound states for point charges shielded by the response of a homogeneous two-dimensional electron gas*” című publikációban. Megvizsgáltuk kötött elektronpár kialakulásának és kötési energiájának a kétdimenziós elektrongáz sűrűségétől való függését. Effektív párkölcsönhatási potenciált konstruáltunk, az elektront és a körülötte létrejövő kicserélődési-korrelációs lyukat egy egységként kezelve. Hasonlóan a magas hőmérsékletű szupravezetőkben tapasztalható T_c -töltéshordozó függvényhez, parabolikus karakterisztikus viselkedést kaptunk az „*Electron-electron interaction in a two dimensional electron gas: Bound states at low densities*” című cikkünkben.

A „*Homogeneous Fermi liquid with artificial repulsive inverse square law interparticle potential energy*” közleményben szinguláris, $V(r)=k/r^2$ potenciállal kölcsönható elektron gáz esetére elemeztük az ún. elektron élettartam (lifetime) karakterisztikus viselkedését a Fermi-szinttől mért energia-távolság függvényében.

Nehéz ionok elektrongázbeli fékeződése régi kutatási témáink közé tartozik. Az ezen a területen elért új eredményeket közöltük a „*Stopping power of a degenerate electron gas for slow ions*” című cikkben. Ebben összehasonlító számítást végeztünk kvantum és klasszikus szóráselméletek felhasználásával nehéz ionok elektrongázban való fékeződésére. Meghatároztuk a töltés nagysága, az árnyékolási hossz és a szórási energia paramétereknek azt a tartományát, amelyben a klasszikus közelítés kvantitatív módon használható.

Az elektronsűrűség jellemzése különböző felbontási szinteken a gyakorlati felhasználások szempontjából válik fontossá. A felbontásnak nem kell minden pontban azonosnak lenni, a függvények részlet gazdag helyein (például az elektronsűrűségnek az atommagok helyén fellépő csúcsainál) lokálisan sokkal finomabb felbontás is alkalmazható, mint a sima, lassan változó részeken. Ennek az elvi lehetőségnek a numerikus számításokban való alkalmazhatóságát vizsgáltuk meg részleteiben a „*Refinement trajectory and determination of eigenstates by a wavelet based adaptive method*” című publikációnkban. Cikkünkben a változó felbontású analízis (multiresolution analysis, MRA) vagy wavelet analízis alkalmazásával egy egyszerű modell rendszer, a harmonikus oszcillátor wavelet együtthatóinak viselkedését tanulmányoztuk. Meghatároztuk, hogy a különböző felbontási szintű megoldások mennyire pontosan közelítik az egzakt eredményeket. Megmutattuk, a numerikus számításokban elkerülhető az a potenciális veszély, hogy a felhasznált bázisfüggvények száma a felbontás finomságával exponenciálisan skálázódjon. Feltérképeztük, hogy milyen trajektóriát járnak be a lényeges wavelet együtthatók a maximális felbontás növelése során. Kidolgoztunk egy olyan adaptív eljárást is, amely képes megadni, hogy melyek a fontos együtthatók az adott szinten, anélkül, hogy az összes (nem lényeges) együtthatót ki kellene számítani.

A kutatási téma gyakorlati alkalmazhatóságát mutatja az a kérdéskör, amelyet az alábbi publikációkban vizsgáltunk meg. A félvezető nanotechnológiák kifejlesztése során felmerülő probléma, hogy a méret csökkenése során az eszközökhöz juttatandó teljesítménysűrűség egyre nő, a kontaktusok mérete pedig egyre csökken. Az, hogy a kisebbedő kontaktusok megfelelően kis ellenállással rendelkezzenek, folyamatos kutató és fejlesztőmunka révén érhető el. Mivel elemi fémekkel nem lehet jó fém-félvezető kontaktusokat létrehozni, különböző ötvözeteket szoktak alkalmazni, jellemzően Au, Ag, Al, vagy Pd alappal. A kontaktusok létrehozása során többféle nem-egyensúlyi folyamat mehet végbe, akár egymással párhuzamosan is a növesztési és kezelési eljárásoktól és körülményektől függően, s a kialakuló rendszerek ennek megfelelően rendkívül sokfélék lehetnek. Bizonyos körülmények között létrejött rendszerek topológiája nanométeres skálán vizsgálva fraktálszerű tulajdonságokat mutat. Az alakzatok fraktáldimenziója függ a kezelési hőmérséklettől és az alkalmazott anyagösszetételtől, s befolyásolja az ohmos kontaktusok minőségét. A waveletek és skálázófüggvények alkalmazása hatékony módszernek bizonyult a fraktáldimenzió számítására is. A témából két cikk jelent meg: „*Analysis of morphology changes of heat treated metallization of compound semiconductors by the fast wavelet-transform based on B-Splines*”, ill. „*Wavelet-transzformációs fraktálanalízis B-spline-okkal*” címmel. A publikációk ismertetnek egy hatékony, wavelet alapú fraktáldimenzió-számoló eljárást. A magyar nyelvű cikk ismeretterjesztő jellegű, hosszabb bevezetést tartalmaz a wavelet-analízisről, villamosmérnöki eszközökkel megvilágítva az eljárás lényegét.

Míg az atomközi távolságokon az elektronpályák, függően az atommagoktól és a külső potenciáltól, kiterjedt vagy lokalizált jellegűek lehetnek – legalábbis független részecske közelítésben –, mezoszkopikus rendszerekben, az úgynevezett köztes távolságokon (intermediate distance) már nemcsak a jól megszokott, exponenciális lecsengéssel rendelkező lokalizált pályák fordulnak elő, hanem jellemző az algebrai lokalizáció, sőt a fraktálszerű szerkezet is. Az ilyen, nagy bonyolultságú állapotok szerkezete, valamint azok energiaspektrumának nívószerkezete felépíthető egészen egyszerű, majd egyre bonyolultabb eloszlások szuperstruktúrájaként. Ezek a szuperstruktúrák úgy képzelhetők el, hogy a kiterjedt rendszer elektronállapotai a különböző hosszúságskálákon más és más, viszonylag egyszerű szerkezetek kombinációjaként állnak elő. Az ilyen szuperstruktúrák analizálására, az őket felépítő egyszerűbb szerkezetek azonosítására, így például a lokalizáció típusára lehet következtetni az ún. strukturális entrópiából, ill. más Rényi-entrópiák felhasználásával. A GaAs (100) alapra növesztett AuGe ötvözet fraktáldimenzióját vizsgálja a „*Heat treatment parameters effecting the fractal dimensions of AuGe metallization on*

GaAs” cikk az alkalmazott hőkezelés hőmérsékletének függvényében. Megállapítja, hogy az ohmos kontaktus szempontjából ideálisnak tekinthető hőmérsékleten a fraktáldimenzióknak szignifikáns minimuma van, a lokalizáció típusa pedig más, mint magasabb és alacsonyabb hőmérsékleten.

Az utóbbi évek kutatásai során vizsgálatainkat a sűrűségfunkcionál elmélet időfüggő változatára is kiterjesztettük. Ezt használva a „*Time-dependent density-functional calculation of the stopping power for protons and antiprotons in metals*” publikációban árnyékolási és fékeződési jelenségeket vizsgáltunk meg háromdimenziós elektrongázban mozgó ponttöltésekre. Az árnyékolódás az attosekundumos tartományba esik. A fékezőerő pedig nagyon lokálisnak adódik. A bemenő mennyiségként kezelt kicserélődési-korrelációs potenciál tag adiabtikus/nem adiabtikus modellezése további vizsgálatokat követel meg.

A waveletek elektronszerkezeti számításokban való alkalmazhatóságát vizsgálva olyan problémákra derült fény, amelyek azt mutatják, hogy a szabályos rácsokon végzett elméleti számítások nehezen egyeztethetők össze a kvantummechanika eszköztárával. Ezeket az elméleti alapokat, ill. a kvantummechanikai mátrix-reprezentációk lehetséges optimalizálását vizsgálja a „*The kinetic energy operator in the subspaces of wavelet analysis*” és a „*Quantum mechanical operators in multiresolution Hilbert spaces*” című cikk. Megmutattuk, hogy a kvantummechanikai operátorok szokásos, „kanonikus” reprezentációja nem a legalkalmasabb a szabályos rácsokon történő számítások elvégzésére.

Meglepő eredményre jutottunk az „*Artifacts of grid-based electron structure calculations*” című publikációban. Kiderült, hogy az impulzus és a helyoperátorok tetszőleges olyan reprezentációja esetén, amely a szabályos rács eltolási szimmetriáját figyelembe veszi, a kanonikus felcserélődési relációk egészen biztosan megsérülnek. Ez nagy óvatosságra int a szabályos rácsokon végzett számítások során, a felcserélési relációk felhasználásával kapott elméleti eredmények értelmezésében.

A pályázat lezárásakor folyamatban lévő kutatásunkat foglaltuk össze a publikálás alatt álló „*A study of two-qubit density matrices with fermionic purifications*” című cikkben. A korábbi kételektronos modell-sűrűségoperátorunkat két qubitese sűrűségmátrixok 12 paraméteres családjába illesztve összefonódottsági (korrelációs) tulajdonságokat vizsgáltunk a Wootters-konkurenciák segítségével. Megmutattuk, hogy a megfelelő összefonódottsági mértékek kielégítik az általánosított Coffman-Kundu-Wootters-formulát.

A különböző területeken kapott eredményeink sok esetben kiterjeszthetők más fizikai rendszerekre is, ezek a vizsgálatok azonban az elkövetkező projektek feladatai lesznek.