

## KHẢO SÁT NĂNG LƯỢNG TƯƠNG QUAN ELECTRON – POSITRON TRONG KIM LOẠI Cu (FCC)

**Châu Văn Tạo, Trịnh Hoa Lăng**

Trường Đại Học Khoa Học Tự Nhiên, ĐHQG-HCM

(Bài nhận ngày 11 tháng 08 năm 2006, hoàn chỉnh sửa chữa ngày 09 tháng 06 năm 2007)

**TÓM TẮT:** Trong bài báo này, chúng tôi đã áp dụng lý thuyết hàm mật độ (DFT) với công cụ tính là phương pháp Monte – Carlo lượng tử (QMC) vào việc tính năng lượng tương quan electron – positron trong kim loại Cu có cấu trúc FCC. Năng lượng tương quan thu được từ tính toán là:  $E^{e-p} = -10,28 \pm 1,11$  eV. Giá trị năng lượng tương quan này là phù hợp với các kết quả của Puska [5] và Nieminen [6].

### 1. GIỚI THIỆU

Positron khi vào môi trường vật chất sẽ bị nhiệt hóa và hủy với electron của môi trường. Giả thiết positron liên kết với electron của nguyên tử môi trường tạo thành trạng thái giả bền trước khi hủy. Khi đó theo Boronski và Nieminen [3] năng lượng tổng của hệ gồm các electron và positron trong thế trường ngoài  $V_{\text{ext}}$  có thể được tính theo lý thuyết hàm mật độ như sau:

$$E[n_-, n_+] = F[n_-] + F[n_+] + \int dr V_{\text{ext}}(r)[n_-(r) - n_+(r)] - \int dr \int dr' \frac{n_-(r)n_+(r')}{|r-r'|} + E_c^{e-p}[n_-, n_+] \quad (1)$$

Với  $F[n]$  là hàm mật độ một thành phần cho electron hoặc positron.

$$F[n] = T[n] + \frac{1}{2} \int dr \int dr' \frac{n(r)n(r')}{|r-r'|} + E_{xc}[n] \quad (2)$$

Với  $T[n]$  là động năng của hệ electron hoặc positron tự do;  $E_{xc}[n]$  là năng lượng tương quan – trao đổi của electron – electron hoặc positron – positron;  $V_{\text{ext}}$  là thế do những hạt nhân nguyên tử và những đám mây điện tích electron gây ra và  $E_c^{e-p}[n_-, n_+]$  là hàm năng lượng tương quan electron – positron.

Áp dụng phương pháp Kohn – Sham [4], tìm mật độ electron và positron trong trạng thái cơ bản của hệ ứng với việc cực tiểu hóa năng lượng tổng  $E[n_-, n_+]$  trong phương trình (1) theo mật độ electron và positron. Theo Kohn – Sham hàm sóng tổng của hệ electron – positron được tính từ những hàm sóng riêng của từng electron và positron thỏa hệ phương trình Schrodinger một hạt cho electron và positron. Khi đó thay cho việc cực tiểu hóa năng lượng tổng  $E[n_-, n_+]$  của hệ bằng việc cực tiểu hóa năng lượng riêng của từng electron và positron.

### 2. PHƯƠNG PHÁP TÍNH

Sử dụng phương pháp biến phân Monte – Carlo lượng tử [1] để giải phương trình Kohn – Sham. Trong biến phân Monte – Carlo lượng tử, yếu tố quyết định kết quả tính toán là mô hình xấp xỉ của Hamilton và dạng hàm sóng thử trong phương trình Kohn - Sham. Mô hình xấp xỉ của Hamilton được sử dụng trong tính toán là mô hình của Born – Oppenheimer.

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \nabla_i^2 - \frac{1}{2} \sum_{p=1}^M \nabla_p^2 + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1, j \neq i}^N \frac{1}{r_{ij}} - \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{p=1}^M \frac{1}{r_{ip}} - \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^{N_a} \frac{Z_e}{R_{ik}} + \sum_{p=1}^M \sum_{k=1}^{N_a} \frac{Z_p}{R_{pk}} + \frac{1}{2} \sum_{k=1}^{N_a} \sum_{h=1, h \neq k}^{N_a} \frac{Z^2}{R_{hk}} \quad (3)$$

$\nabla_i^2, \nabla_p^2$  : lần lượt là toán tử động năng của electron và positron.

$r_{ij}$  : khoảng cách giữa electron thứ  $i$  và thứ  $j$ .

$r_{ip}$  : khoảng cách giữa electron thứ  $i$  và positron thứ  $p$ .

$R_{ik}$  : khoảng cách giữa electron thứ  $i$  và hạt nhân nguyên tử thứ  $k$ .

$R_{pk}$  : khoảng cách giữa positron thứ  $p$  và hạt nhân nguyên tử thứ  $k$ .

$R_{hk}$  : khoảng cách giữa hạt nhân nguyên tử thứ  $h$  và hạt nhân nguyên tử thứ  $k$ .

$N$  : là số electron trong hệ;  $M$  : là số positron trong hệ.

$N_a$ : là số nguyên tử trong ô mô phỏng, trong cấu trúc mạng FCC thì  $N_a = 13$ .

Ở đây tương tác giữa electron – electron, electron – positron và hạt nhân nguyên tử – hạt nhân nguyên tử được xấp xỉ theo tương tác Coulomb và đơn vị được sử dụng là đơn vị nguyên tử, tức là  $e = m = \hbar = 1$ .

Hàm sóng thử của electron và positron có cùng dạng giải tích nhưng chỉ khác nhau ở những tham số biến phân. Hàm sóng của đơn electron hoặc positron  $\phi_i(\vec{r})$  được tách ra thành tích của hàm sóng xuyên tâm và hàm cầu. Trong đó hàm sóng xuyên tâm của electron và positron trong nguyên tử được xấp xỉ theo những hàm sóng cơ sở Laguerre [2].

Hàm sóng của electron và positron trong mạng tinh thể được xấp xỉ như là tổ hợp tuyến tính các hàm sóng quỹ đạo, tức là hàm sóng của electron trong một nguyên tử trong mạng tinh thể sẽ có dạng :

$$\Psi_i(\vec{r}) = \sum_k C_{ki} \phi_i(\vec{r} - \vec{R}_k) \quad (4)$$

Với  $\phi_i(\vec{r} - \vec{R}_k)$  là hàm sóng đơn electron và tổng được lấy trên tất cả các nguyên tử trong mạng. Nhưng theo mô hình xấp xỉ bậc một thì ta chỉ xét các nguyên tử lân cận gần nhất. Do vậy tổng trong (4) sẽ được lấy trên tất cả các nguyên tử lân cận và nguyên tử chứa electron. Với  $C_{ki}$  là hằng số chuẩn hóa. Khi đó hàm sóng toàn phần của hệ electron-positron sẽ có dạng:

$$\Psi_T(\vec{r}_{e^+}, \vec{r}_{e^-}, \vec{r}_{e^+e^-}) = \Psi_{e^-}(\vec{r}_{e^-}) \Psi_{e^+}(\vec{r}_{e^+}) \Psi_J(\vec{r}_{e^+e^-}) \quad (5)$$

trong đó  $\Psi_{e^-}(\vec{r}_{e^-})$ ,  $\Psi_{e^+}(\vec{r}_{e^+})$  là hàm sóng tổng của electron và positron (hai hàm sóng này được tính từ các hàm sóng đơn hạt trong công thức (4)), và  $\Psi_J(\vec{r}_{e^+e^-})$  là hệ số Jastrow thể hiện sự tương quan electron-positron. Theo xấp xỉ Pade thì  $\Psi_J(\vec{r}_{e^+e^-})$  có dạng :

$$\Psi_J(\vec{r}_{e^+e^-}) = \frac{\beta'}{1 + \alpha' \vec{r}_{e^+e^-}} \quad (6)$$

Theo phương pháp biến phân Monte-Carlo lượng tử thì năng lượng của hệ được cho bởi:

$$E_T = \int \frac{1}{\Psi_T(\mathbf{R})} \hat{H} \Psi_T(\mathbf{R}) |\Psi_T(\mathbf{R})|^2 d\mathbf{R} \quad (7)$$

Trong đó  $\Psi_T(\mathbf{R})$  là hàm sóng tổng của hệ được tính theo công thức (5).

$|\Psi_T(\mathbf{R})|^2$  là xác suất phân bố và một tập lớn hữu hạn các điểm được lấy mẫu từ phân bố xác suất này sử dụng thuật toán Metropolis. Nếu những điểm này là  $\mathbf{R}_1, \dots, \mathbf{R}_M$ , khi đó tính toán thống kê của tích phân là :

$$E_T = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M \left( \frac{1}{\Psi_T(\mathbf{R}_i)} \hat{H} \Psi_T(\mathbf{R}_i) \right) \quad (8)$$

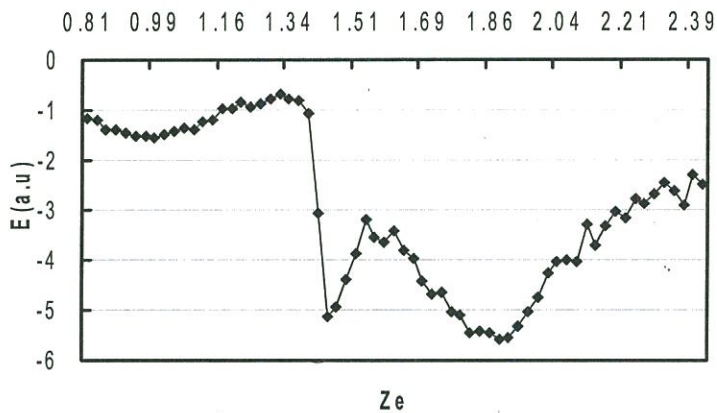
Công thức (8) là công thức quan trọng được sử dụng trực tiếp trong tính toán Monte – Carlo. Trong công thức này hai đại lượng quan trọng quyết định tính chính xác của quá trình tính toán là dạng xấp xỉ của hàm sóng thử  $\Psi_T(R)$  và mô hình xấp xỉ của Hamilton. Dạng xấp xỉ của hàm sóng  $\Psi_T(R)$  được cho sẽ có một dạng xấp xỉ giải tích phụ thuộc vào các tham số biến phân trong hàm sóng.

### 3. KẾT QUẢ TÍNH TOÁN.

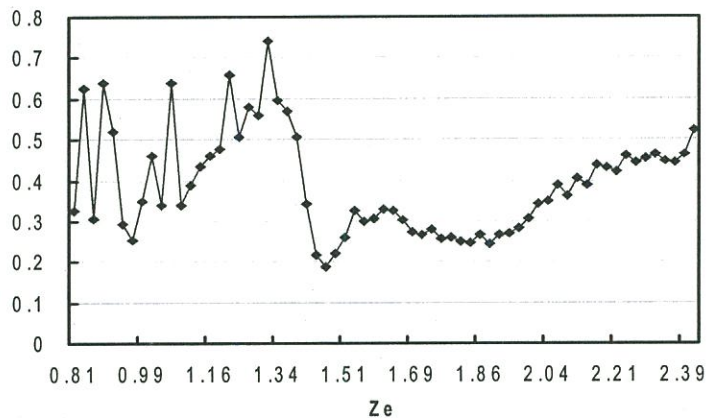
Các tham số biến phân trong hàm sóng:  $Z_e$  là thế hiệu dụng của hạt nhân nguyên tử đối với electron;  $Z_p$  là thế hiệu dụng của hạt nhân nguyên tử đối với positron;  $\beta'$ ,  $\alpha'$  là tham số biến phân của hệ số Jastrow thể hiện ảnh hưởng tương quan giữa electron – positron.

Thực hiện các tính toán biến phân Monte – Carlo với số cấu hình 500 và số bước Monte – Carlo 10000 chúng tôi thu được các kết quả.

#### 3.1. Biến phân theo $Z_e$



Hình 1. Đồ thị biểu diễn năng lượng toàn phần của hệ  $e^- - e^+$  của nguyên tử Cu(FCC) theo  $Z_e$ .

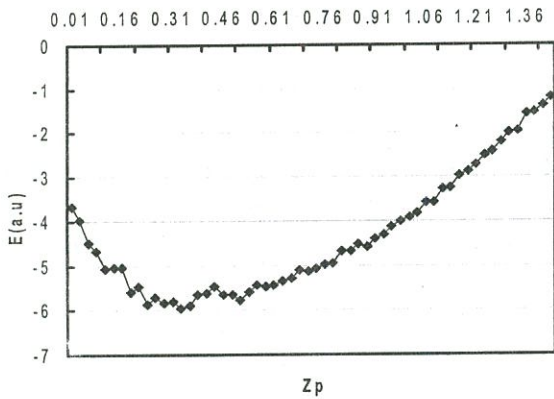


Hình 2. Đồ thị biểu diễn sai số tương đối  $\sigma/E$  của hệ  $e^- - e^+$  của nguyên tử Cu(FCC) theo  $Z_e$ .

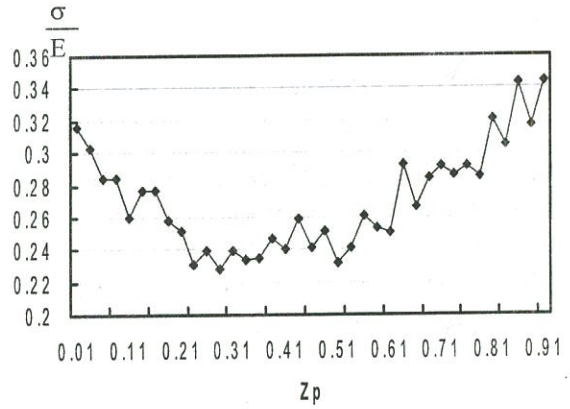
Từ hai đồ thị trong hình 1 và hình 2, ta có giá trị tham số  $Z_e = 1,46$  tối ưu ( tức là giá trị  $Z_e$  làm cho năng lượng và phương sai có giá trị nhỏ nhất).

### 3.2. Biến phân theo $Z_p$

Từ hai đồ thị trong hình 3 và hình 4, ta có giá trị tham số  $Z_p = 0,285$  tối ưu (tức là giá trị  $Z_p$  làm cho năng lượng và phương sai có giá trị nhỏ nhất)

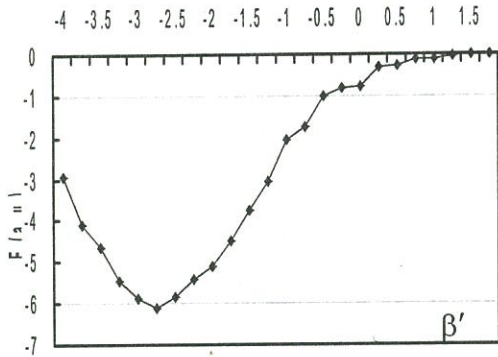


**Hình 3.** Đồ thị biểu diễn năng lượng toàn phần của hệ  $e^- - e^+$  của nguyên tử Cu – FCC theo  $Z_p$ .

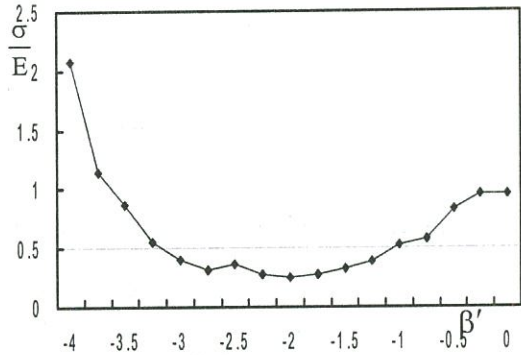


**Hình 4.** Đồ thị biểu diễn sai số tương đối  $\sigma/E$  của hệ  $e^- - e^+$  của nguyên tử Cu – FCC theo  $Z_p$ .

### 3.3. Biến phân theo $\beta'$



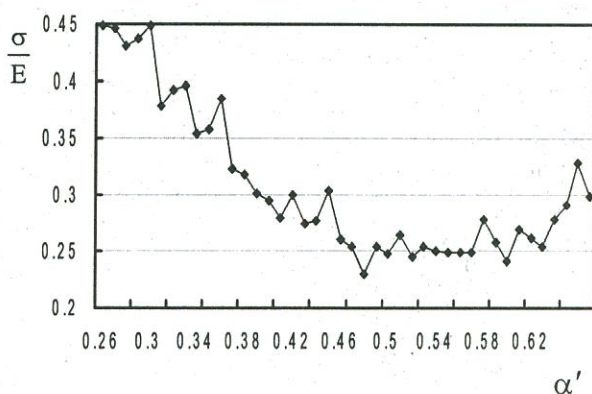
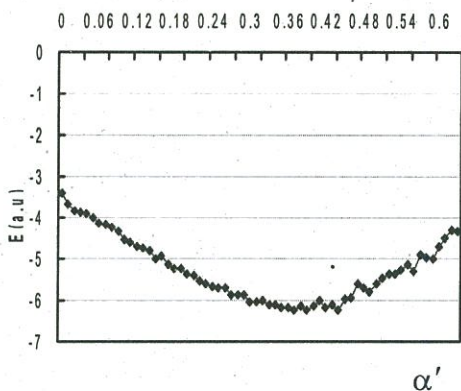
**Hình 5.** Đồ thị biểu diễn năng lượng toàn phần của hệ  $e^- - e^+$  của nguyên tử Cu (FCC) theo  $\beta'$ .



**Hình 6.** Đồ thị biểu diễn sai số tương đối  $\sigma/E$  của hệ  $e^- - e^+$  của nguyên tử Cu(FCC) theo  $\beta'$

Từ hai đồ thị trong hình 5 và hình 6 ta nhận thấy các giá trị năng lượng trong khoảng  $\beta' = -3$  đến  $-1,5$  có sai số tương đối thay đổi không đáng kể nên ta chọn giá trị tham số  $\beta' = -2,75$  tối ưu theo giá trị năng lượng (tức là giá trị  $\beta'$  làm cho năng lượng có giá trị nhỏ nhất)

### 3.4. Biến phân theo $\alpha'$



**Hình 7.** Đồ thị biểu diễn năng lượng toàn phần của hệ  $e^- - e^+$  của nguyên tử Cu (FCC) theo  $\alpha'$ .

**Hình 8.** Đồ thị biểu diễn sai số tương đối  $\sigma/E$  của hệ  $e^- - e^+$  của nguyên tử Cu(FCC) theo  $\alpha'$ .

Từ hai đồ thị trong hình.7 và hình.8 ta có giá trị tham số  $\alpha' = 0,48$  tối ưu (tức là giá trị  $\alpha'$  làm cho năng lượng và phương sai có giá trị nhỏ nhất).

### 3.5. Năng lượng tương quan electron – positron trong kim loại Cu(FCC).

Giá trị năng lượng tương quan electron – positron trong kim loại được tính theo tập hợp các tham số đã được tối ưu ( $Z_e = 1,46$ ;  $Z_p = 0,285$ ;  $\alpha' = 0,48$ ;  $\beta' = -2,75$ ) thu được kết quả được cho trong bảng 1.

**Bảng 1.** Các giá trị năng lượng tương quan  $e^- - e^+$  trong kim loại Cu.

$E_c^{e-p} \text{ (a)} (\text{eV})$	$E_c^{e-p} \text{ (b)} (\text{eV})$	$E_c^{e-p} \text{ (c)} (\text{eV})$	$E_c^{e-p} \text{ (d)} (\text{eV})$
$-10,28 \pm 1,11$	-9,5	-9,23	-9,33

$E_c^{e-p} \text{ (a)}$ : là năng lượng tương quan electron – positron được tính trong bài báo theo phương pháp biến phân Monte Carlo.

$E_c^{e-p} \text{ (b)}$ : là năng lượng tương quan electron – positron của R. M. Nieminen [6].

$E_c^{e-p} \text{ (c)}$ : là năng lượng tương quan electron – positron của M. J. Puska và R. M. Nieminen theo xấp xỉ trong hệ tọa độ ba chiều [5].

$E_c^{e-p} \text{ (d)}$ : là năng lượng tương quan electron – positron của M. J. Puska và R. M. Nieminen theo xấp xỉ Wigner – Seitz [5].

## 4. KẾT LUẬN

Áp dụng lý thuyết hàm mật độ hai thành phần và các phương pháp xấp xỉ, thực hiện các tính toán bằng phương pháp biến phân Monte – Carlo lượng tử cho hệ  $e^+ - e^-$  trong kim loại Cu, chúng tôi đã chỉ ra: các tham số thể hiện dụng của hạt nhân nguyên tử đối với electron  $Z_e =$

1,46; thể hiệu dụng hạt nhân nguyên tử đối với positron  $Z_p = 0,285$ ; và các tham số của hệ số Jastrow  $\alpha' = 0,48$ ;  $\beta' = -2,75$  ứng với năng lượng tương quan giữa electron – positron là cực tiểu. Từ các tham số trên, năng lượng tương quan  $e^+ - e^-$  trong kim loại Cu(FCC) đã được tính là  $E_c^{e-p} = -10,28 \pm 1,11$  eV. Kết quả thu được là khá phù hợp với các kết quả của R. M. Nieminen [6], M. J. Puska và R. M. Nieminen [5].

Từ kết quả thu được đã cho thấy rằng phương pháp lý thuyết hàm mật độ kết hợp với biến phân Monte – Carlo lượng tử có thể áp dụng vào việc tính năng lượng tương quan  $e^+ - e^-$  trong vật liệu có cấu hình (FCC).

## DFT CALCULATIONS OF THE ELECTRON – POSITRON ENERGY CORRELATION IN METAL Cu (FCC)

Chau Van Tao, Trinh Hoa Lang  
University of Natural Sciences, VNU-HCM

**ABSTRACT:** *In this article, density functional theory (DFT) and quantum Monte – Carlo method are applied for calculating the electron – positron energy correlation in copper metal with FCC structure. The calculations pointed out that this value was about  $-10,28 \pm 1,11$  eV. This value is similar to Puska [5] and Nieminen's the results [6].*

### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. B. L. Hammond, W. A. Lester, and P. J. Reynolds, *Monte Carlo Methods in Ab Initio Quantum Chemistry*, World Scientific, Address, (1994).
- [2]. C. J. Umrigar, K. G. Wilson and J. W. Wilkins, *Optimized Trial Wave Functions for Quantum Monte Carlo Calculations*, Phys. Rev. Lett. 60, 1719, (1988).
- [3]. E. Boronski and R. M. Nieminen, *Electron – Positron Density – Functional Theory*, Phys. RevB 34, 3820, (1985).
- [4]. Kohn. W and Sham. LJ, *Self-consistent equations including exchange and correlation effects*, Phys. Rev. 140, A1133-A1138, (1965).
- [5]. M. J. Puska and R. M. Nieminen, *Defect spectroscopy with positron : general calculation method*, J. Phys 13, 333 – 346, (1983).
- [6]. R. M. Nieminen, *Defect and Surface studies with positron*, Department of Physics, University of Jyvaskyla, (1972).