

ВЛИЯНИЕ МНОГОЧАСТИЧНЫХ КОРРЕЛЯЦИЙ НА СТАБИЛЬНОСТЬ ЭЛЕКТРОН-ПОЗИТРОННЫХ КЛАСТЕРОВ

А. Н. Ипатов, В. К. Иванов, Р. Г. Полозков*

*Санкт-Петербургский государственный политехнический университет
195251, Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 17 марта 2013 г.

Представлены результаты расчетов полной энергии электронейтральных электрон-позитронных кластеров с замкнутыми оболочками, содержащих различное число пар. Учет многочастичных корреляций в приближении случайных фаз с обменом позволил добиться снижения энергии на пару частиц до значений, меньших, чем энергия на одну пару молекулы дипозитрония. При расчетах была обнаружена область минимума полной энергии на пару частиц при значениях числа пар в диапазоне от 20 до 40, предположительно соответствующих наиболее стабильным электрон-позитронным каплям.

DOI: 10.7868/S0044451013100040

1. ВВЕДЕНИЕ

Проблема поиска связанного состояния материи и антиматерии, в частности, электрон-позитронных систем, имеет давнюю историю. Еще до того как в 1951 г. экспериментально был обнаружен позитроний [1] — связанное состояние электрона и позитрона, подобное атому, — в 1946 г. в рамках простой теоретической модели была предсказана возможность существования молекулы дипозитрония — связанного состояния двух пар позитрониев [2]. Практически сразу за этим в 1947 г. последовал расчет энергии дипозитрония на основе решения уравнения Шредингера для четырех тел (двух электронов и двух позитронов) без учета спина и динамических корреляций, подтверждающий эту гипотезу [3]. В дальнейшем был проведен ряд расчетов с целью уточнения энергии дипозитрония и оценки времени жизни такой системы [4–6], вплоть до экспериментального обнаружения дипозитрония в 2005 г. [7]. Таким образом, считается доказанным существование связанного состояния из двух пар электронов и позитронов. Но можно ли утверждать, что также возможно образование компактных связанных систем, содержащих большее число электронов и позитронов? Этот вопрос остается открытым вплоть до настоящего времени.

В работе [8] было показано, что в определенном диапазоне плотностей частиц и температур возможно образование электрон-позитронной жидкости, в которой движение электронов и позитронов строго коррелировано благодаря сильному кулоновскому взаимодействию. Таким образом, можно ожидать образования электрон-позитронных капель, подобных электрон-дырочным каплям, обнаруженным в полупроводниках [9]. В электрон-позитронной капле число частиц теоретически может варьировать от двух электрон-позитронных пар до бесконечности. Подобно тому, как это происходит в атоме позитрония, в электрон-позитронных каплях конечных размеров движение электронов и позитронов должно быть квантовано. При этом подсистемы электронов и позитронов движутся в самосогласованном поле, создаваемом совместно электронами и позитронами, сохраняя всю систему в целом электронейтральной. По своим свойствам электрон-позитронные капли, образованные в результате взаимодействия электронной и позитронной подсистем, должны иметь много общего с кластерами щелочных металлов, в которых валентные электроны практически полностью делокализованы в объеме системы. Основываясь на этом предположении, была предложена и реализована новая модель расчета электрон-позитронных капель [10–12].

В частности, в работах [10–12] были теоретически исследованы электрон-позитронные капли, содержащие от двух до 100 пар. Расчеты электрон-

*E-mail: andrei_ipatov@mail.ru

ной структуры подобных систем, выполненные как в приближении Хартри–Фока, так и в приближении локальной плотности, показали, что, как и в случае металлических кластеров [13], минимальные значения полной энергии, приходящейся на одну частицу, имеют системы, содержащие «магические» числа электрон-позитронных пар, в которых частицы образуют замкнутые оболочки. При этом, как было показано в работах [10–12], оптимальное распределение плотности обеих подсистем, обеспечивающее абсолютный минимум полной энергии, должно удовлетворять условию локальной электронной нейтральности, при котором плотности положительного и отрицательного зарядов равны в каждой точке объема кластера. Аналогичная ситуация возникает при описании кластеров щелочных металлов в рамках оптимизированной модели «желе» [14].

В то же время вопрос о возможности образования стабильных систем, содержащих более одной электрон-позитронной пары и связанных между собой посредством кулоновского и обменного взаимодействия, остался открытым, поскольку полученные в результате проведенных расчетов значения полной энергии, приходящейся на пару частиц, оказались существенно выше, чем энергия на пару в дипозитронии [4–6]. Это объясняется тем, что в рамках использованных приближений (приближения Хартри–Фока и локальной плотности) не учитывается динамическая часть межчастичных корреляций в электронной и позитронной подсистемах, в частности, поляризационное взаимодействие. Это же косвенно подтверждается тем фактом, что приведенные в работах [10, 11] энергии электрон-позитронных кластеров, полученные в приближении локальной плотности в рамках теории функционала плотности, где принимается в расчет часть многочастичных корреляций, оказались по модулю заметно больше, чем энергии, полученные в приближении Хартри–Фока [12].

Целью данной работы является исследование роли корреляционных эффектов в возможном образовании стабильных электрон-позитронных кластеров. В рамках поставленной задачи были вычислены корреляционные поправки к хартри-фовской энергии связи в различных приближениях для ряда наиболее стабильных электрон-позитронных кластеров, содержащих «магические» числа пар.

В работе используется атомная система единиц: $\hbar = |e| = m_e = 1$.

2. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ ПОДХОД И РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

Полная энергия E_{tot} кластера, содержащего n электрон-позитронных пар, складывается из полных энергий электронной и позитронной подсистем E_e и E_p , имеющих в рамках используемой модели одинаковые зарядовые плотности противоположного знака, за вычетом энергии взаимодействия между ними E_{e-p} .

В приближении Хартри–Фока полная энергия исследуемой системы равна [12]

$$E_{tot} = 2 \left(\sum_{i=1}^{occ} \varepsilon_i + E_{exch} \right). \quad (1)$$

Здесь ε_i — одночастичные энергии занятых состояний, являющиеся собственными значениями системы уравнений Хартри–Фока [14]

$$-\frac{\nabla_i^2}{2} \varphi_i(\mathbf{r}) - \sum_j \int \frac{\varphi_j^*(\mathbf{r}') \varphi_i(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}' \varphi_j(\mathbf{r}) = \varepsilon_i \varphi_i(\mathbf{r}), \quad (2)$$

где суммирование проводится по всем занятым одночастичным состояниям. При этом в рассматриваемом случае систем с заполненными оболочками, обладающих центральной симметрией, одночастичные волновые функции могут быть представлены в виде произведения радиальной, угловой и спиновой составляющих:

$$\varphi(\mathbf{r}) \equiv \varphi(\mathbf{r}, \sigma) = \frac{P_{nl}(r)}{r} Y_{lm}(\theta, \varphi) \chi_\mu(\sigma), \quad (3)$$

и характеризуются набором квантовых чисел n, l, m, μ [15].

Важно отметить, что уравнения (2) в равной степени описывают электронную и позитронную составляющие кластера.

Энергия обменного взаимодействия в выражении (1) равна

$$E_{exch} = \frac{1}{2} \sum_{i,j=1}^{occ} \langle ij|V|ji \rangle, \quad (4)$$

где $\langle \alpha\beta|V|\gamma\delta \rangle$ — кулоновские матричные элементы,

$$\langle \alpha\beta|V|\gamma\delta \rangle = \delta_{\sigma_\alpha \sigma_\gamma} \delta_{\sigma_\beta \sigma_\delta} \times \times \iint d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \frac{\varphi_\alpha^*(\mathbf{r}) \varphi_\beta^*(\mathbf{r}') \varphi_\gamma(\mathbf{r}) \varphi_\delta(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}, \quad (5)$$

а индексы $\sigma_\alpha, \sigma_\beta, \sigma_\gamma, \sigma_\delta$ обозначают проекции спина соответствующих одночастичных состояний.

Как уже было отмечено, в рамках приближения Хартри–Фока не учитываются многочастичные корреляции, в частности, поляризационное взаимодействие, что приводит к недооценке полной энергии системы [16]. Иллюстрацией того, что в результате включения корреляционных эффектов происходит систематическое понижение полной энергии кластера, содержащего n электрон-позитронных пар, может служить сравнение значений полной энергии, приходящейся на пару частиц, E_{tot}/n , полученных в приближении локальной плотности

$$\Delta E^{(MP2)} = E_{e-e}^{(MP2)} + E_{p-p}^{(MP2)} + E_{e-p}^{(MP2)} = - \sum_{ij,mn} \frac{4\langle ij|V|mn\rangle\langle mn|V|ij\rangle - \langle ij|V|nm\rangle\langle mn|V|ij\rangle}{\varepsilon_m + \varepsilon_n - \varepsilon_i - \varepsilon_j}. \quad (6)$$

Здесь и в дальнейшем индексы i, j и m, n обозначают, соответственно, заполненные (дырочные) и незаполненные (виртуальные) одночастичные состояния. Таким образом, суммарная энергия системы, приходящаяся на пару частиц, во втором порядке теории возмущений равна

$$(E_{tot}^{(HF)} + \Delta E^{(MP2)}) / n.$$

Как было показано в работе [18], несмотря на то что учет корреляций во втором порядке теории возмущений приводит к заметному снижению полной энергии системы по сравнению с приближением Хартри–Фока, этого по-прежнему оказывается недостаточно для точной оценки полной энергии системы. Для более полного учета вклада корреляционного взаимодействия между частицами необходимо включить более высокие порядки теории возмущений. В данной работе для более полного описания многочастичных эффектов было использовано приближение случайных фаз с обменом (ПСФО или RPAE), в рамках которого возможно осуществить суммирование бесконечного числа кольцевых диаграмм.

В приближении случайных фаз с обменом коррелированное возбужденное состояние может быть представлено в виде

$$|\Phi_\nu\rangle = \sum_{ia} (X_{im}^\nu \hat{a}_m^\dagger \hat{a}_i - Y_{ia}^\nu \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_m) |\Phi_0\rangle. \quad (7)$$

Здесь

$$\Phi_0 = \frac{1}{\sqrt{N!}} \text{Det} \{\varphi_i(\mathbf{r}_i)\}$$

— волновая функция основного состояния системы в приближении Хартри–Фока, \hat{a}_α^\dagger и \hat{a}_β — одночастичные фермионные операторы рождения и

(LDA) [11] и в рамках приближения Хартри–Фока [12].

В рамках теории возмущений вклад поляризационного взаимодействия между частицами может быть учтен в приближении Мёллера–Плессета второго порядка (MP2) [17], включающем в себя так называемые «кольцевые» диаграммы. В случае электрон-позитронной капли поправка к энергии системы, учитывающая поляризационное взаимодействие в приближении MP2, может быть представлена в виде суммы трех составляющих:

уничтожения, а коэффициенты X_{mi}^ν и Y_{mi}^ν , которые носят названия амплитуд соответственно «вперед-во-времени» и «назад-во-времени», характеризуют вклад отдельных детерминантов $\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_m |0\rangle$ и $\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_m |0\rangle$ в состояние (7). Учитывая, что в рамках используемой модели плотности обеих компонент кластера равны [10–12], разложение (7) в равной степени описывает волновую функцию как электронной, так и позитронной подсистемы. Компоненты векторов \mathbf{X}^ν и \mathbf{Y}^ν , как было показано в работе [19], при условии симметрии между электронной и позитронной подсистемами могут быть найдены в результате решения уравнения ПСФО, имеющего $N_{eh} + N_{ph}$ независимых решений, где $N_{eh} = N_{ph}$ — число учитываемых одночастичных электрон-дырочных и позитрон-дырочных пар:

$$\begin{pmatrix} \mathbf{A} & \mathbf{B} \\ \mathbf{B}^* & \mathbf{A}^* \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{X}^\nu \\ \mathbf{Y}^\nu \end{pmatrix} = \Omega_\nu^{(RPAE)} \begin{pmatrix} \mathbf{X}^\nu \\ -\mathbf{Y}^\nu \end{pmatrix}. \quad (8)$$

Здесь элементы эрмитовых матриц \mathbf{A} , \mathbf{B} записываются как [19]

$$\begin{aligned} A_{im,jn} &= \omega_{im} \delta_{ij} \delta_{mn} + 4\langle in|V|mj\rangle - \langle in|V|jm\rangle, \\ B_{im,jn} &= 4\langle ij|V|mn\rangle - \langle ij|V|nm\rangle. \end{aligned} \quad (9)$$

Полученные в результате решения уравнения (8) коэффициенты Y_{mi}^ν могут быть использованы для оценки степени коррелированности основного состояния системы по сравнению с приближением Хартри–Фока. Корреляционная поправка к энергии основного состояния по отношению к ее значению в приближении Хартри–Фока может быть записана в виде [20]

$$\Delta E^{(RPAE)} = - \sum_{im,\nu} \Omega_\nu^{(RPAE)} |Y_{im}^\nu|^2, \quad (10)$$

где суммирование проводится по всем возбужденным состояниям $|\Phi_\nu\rangle$, энергии которых являются собственными числами уравнения (8).

Этот же результат также может быть получен непосредственно как разность [20]

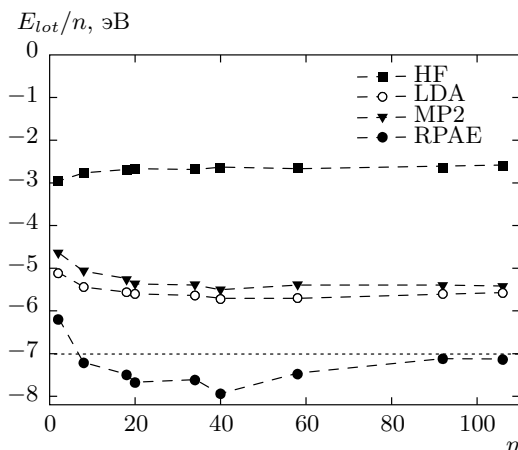
$$\Delta E^{(RPAE)} = -\frac{1}{2} \sum_\nu \left(\Omega_\nu^{(RPAE)} - \Omega_\nu^{(TDA)} \right), \quad (11)$$

где $\Omega_\nu^{(TDA)}$ — собственные частоты соответствующего уравнения Тамма–Данкова

$$\tilde{A}X = \Omega^{(TDA)}X. \quad (12)$$

Следует отметить, что для решения уравнения (8) требуется полный базис одночастичных функций (3), включающий в себя состояния как дискретного, так и непрерывного спектра. При проведении численных расчетов в данной работе был использован метод, основанный на замене виртуальных одночастичных состояний псевдосостояниями только дискретного спектра. В основе данного подхода лежит представление радиальной части волновой функции (3) в виде линейной комбинации кусочно-непрерывных полиномов, заданных на достаточно большом радиальном интервале $[0, R_{max}]$, так называемых би-сплайнов (В-сплайнов) [21]. При этом функции $P_{nl}(r)$ удовлетворяют граничным условиям $P_{nl}(0) = P_{nl}(R_{max}) = 0$, т.е. система предполагается помещенной в сферическую потенциальную яму с бесконечно высокими стенками. Подобный подход позволяет заменить интегрирование по непрерывной части спектра суммированием по конечному числу дискретных псевдосостояний. При проведении расчетов использовались 50 би-сплайнов седьмого порядка для каждого орбитального квантового числа l , а суммирование при вычислении корреляционных поправок к энергии основного состояния (6) и (10) осуществлялось с учетом переданных угловых моментов вплоть до $l = 10$.

В табл. 1 для сравнения приведены значения энергий, приходящихся на пару частиц, для кластеров, содержащих различное число электрон-позитронных пар, сосчитанные в приближении Хартри–Фока, а также с учетом корреляционного взаимодействия в приближении MP2 и в приближении случайных фаз с обменом. Как видно из табл. 1, а также из рисунка, наиболее низкие значения энергии имеют кластеры с замкнутыми оболочками, содержащие 20, 34 и 40 электрон-позитронных пар. Именно на эти кластеры приходится заметный минимум полной энергии системы, рассчитанной с учетом корреляционных поправок, в то время как энергии в приближении Хартри–Фока имеют примерно



Энергии на пару частиц электрон-позитронных кластеров как функции числа пар, рассчитанные в рамках различных теоретических методов. Пунктиром обозначен результат *ab initio* расчета для молекулы дипозитрония [4]

равные величины для всех кластеров, кроме случая с $n = 2$, для которого $E_{tot}^{(HF)}/n$ имеет более низкое значение. Напротив, как показали расчеты, энергия на пару частиц, полученная с учетом корреляционных поправок $(E_{tot}^{(HF)} + \Delta E^{(RPAE)})/n$, для кластера, содержащего только две электрон-позитронные пары, оказалась выше половины полной энергии молекулы дипозитрония (7.02 эВ), полученной в результате *ab initio* расчетов [4], в то время как системы большего размера имеют более низкие энергии, что должно обеспечивать их устойчивость.

Таким образом, можно предположить, что образование кластера из двух электрон-позитронных пар, связанных между собой обменно-корреляционным взаимодействием, является энергетически невыгодным и более устойчивой является структура молекулы дипозитрония, в которой пары связаны между собой ван-дер-ваальсовым взаимодействием [8]. Для систем большего размера, напротив, более выгодным может оказаться образование электрон-позитронной капли. В пользу последнего предположения говорит тот факт, что на кластеры с $n = 8-40$ приходится максимум отношения рассчитанной в приближении случайных фаз с обменом статической дипольной поляризуемости электронной (и позитронной) подсистемы к кубу среднего радиуса $\alpha/\langle r \rangle^3$ (см. табл. 2), где

$$\langle r \rangle = \sum_i \int \varphi_i^*(\mathbf{r}) r \varphi_i(\mathbf{r}) d\mathbf{r}.$$

Таблица 1. Энергии связи электрон-позитронных кластеров, содержащих различное число пар n , сосчитанные в приближении Хартри–Фока, а также с учетом корреляционных поправок в приближении Мёллера–Плессета второго порядка (MP2) и в приближении случайных фаз с обменом

n	$E_{tot}^{(HF)}/n$, эВ	$(E_{tot}^{(HF)} + \Delta E^{(MP2)})/n$, эВ	$(E_{tot}^{(HF)} + \Delta E^{(RPAE)})/n$, эВ
2	-2.96	-4.63	-6.20
8	-2.76	-5.06	-7.22
18	-2.70	-5.26	-7.50
20	-2.68	-5.36	-7.68
34	-2.68	-5.38	-7.62
40	-2.64	-5.50	-7.94
58	-2.66	-5.38	-7.48
92	-2.62	-5.40	-7.13
106	-2.60	-5.42	-7.14

Таблица 2. Значения среднего радиуса $\langle r \rangle$ электронной подсистемы, ее статической дипольной поляризуемости α и отношения $\alpha/\langle r \rangle^3$ для кластеров, содержащих различное число электрон-позитронных пар

n	$\langle r \rangle$, ат. ед.	α , (ат. ед.) ³	$\alpha/\langle r \rangle^3$
2	4.19	174	2.26
8	6.70	799	2.62
18	9.20	1752	2.28
20	9.14	2046	2.68
34	11.46	3225	2.54
40	11.55	4130	2.68
58	13.63	5384	2.12
92	15.80	8432	2.12
106	16.36	9390	2.14

У этих систем наблюдается оптимальное соотношение между ростом числа частиц, участвующих в корреляционном взаимодействии, и уменьшением поверхностной области, дающей наибольший вклад в поляризационное взаимодействие, по отношению к объему.

3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе представлены результаты расчетов полной энергии электронейтральных электрон-позитронных кластеров с замкнутыми оболочками, содержащих различное число пар, связанных между собой кулоновским и обменным взаимодействием. Сравнение результатов расчетов полной энергии, приходящейся на одну пару частиц, проведенных в приближении Хартри–Фока, с результатами *ab initio* вычислений дают основание полагать, что в рамках одночастичного подхода без учета корреляций не удастся обеспечить стабильность описываемой системы. Однако приближение Хартри–Фока может быть использовано в качестве нулевого приближения для дальнейшего последовательного учета многочастичных корреляций.

Расчеты показали, что включение корреляционного взаимодействия во втором порядке теории возмущений в приближении Мёллера–Плессета второго порядка приводит к заметному снижению полной энергии системы до уровня, близкого к результатам вычислений в рамках приближения локальной плотности [12]. Однако, как видно из рисунка, значения полной энергии, приходящейся на одну электрон-позитронную пару, с учетом MP2-поправки по-прежнему оказываются существенно выше уровня -7.02 эВ, соответствующего половине полной энергии системы из двух электронных пар, полученной в результате *ab initio* расчета [4].

Включение в расчет корреляций в приближении случайных фаз с обменом, обеспечивающем суммирование бесконечной последовательности кольцевых диаграмм, позволило добиться снижения энергии на пару частиц до значений, меньших -7.02 эВ, для всех кластеров, кроме системы, содержащей две электрон-позитронные пары. Последнее может быть объяснено тем, что при расчетах была использована сферически-симметричная модель, которая, по-видимому, применима лишь для кластеров большего размера, структура которых близка к сферической. При учете многочастичных корреляций в рамках ПСФО была обнаружена область минимума полной энергии на пару частиц при значениях числа пар n в диапазоне от 20 до 40, соответствующих наиболее стабильным электрон-позитронным каплям, которые предположительно могут быть сформированы в результате кулоновского взаимодействия между частицами. Такие объекты, возможно, могут быть получены экспериментально, например, в результате взаимодействия пучков электронов и позитронов с малыми энергиями и обнаружены методами оптической спектроскопии. В пользу последнего утверждения говорит тот факт, что характерное время, соответствующее частоте дипольного резонанса в подобных системах составляет приблизительно 2 фс [19]. Эта величина на пять порядков меньше времени аннигиляции молекулы дипозитрония [5], что предположительно может обеспечить достаточное время жизни электрон-позитронных кластеров для исследования их оптических свойств.

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Deutsch, Phys. Rev. **82**, 455 (1951).
2. J. A. Wheeler, Ann. New York Acad. Sci. **48**, 219 (1946).
3. E. A. Hylleraas and A. Ore, Phys. Rev. **71**, 493 (1947).
4. D. B. Kinghorn and R. D. Poshusta, Phys. Rev. A **47**, 3671 (1993).
5. P. M. Kozlovski and L. Adamowicz, J. Phys. Chem. **100**, 6266 (1996).
6. T. K. Rebane and V. S. Zotev, Optics and Spectroscopy **80**, 355 (1986).
7. D. B. Cassidy and A. P. Mills, Jr., Nature **449**, 195 (2007).
8. H. Yabu, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **221**, 144 (2004).
9. Н. Б. Брандт, В. А. Кульбачинский, *Квазичастицы в физике конденсированного состояния*, Физматлит, Москва (2005).
10. A. V. Solov'yov, V. K. Ivanov, and R. G. Polozkov, Europ. Phys. J. D **40**, 313 (2006); В. К. Иванов, Р. Г. Полозков, А. В. Соловьев, Научно-технические ведомости СПбГПУ, № 1 (49), 233 (2007).
11. V. K. Ivanov, R. G. Polozkov, and A. V. Solov'yov, in *Latest Advances in Atomic Cluster Collisions: Structure and Dynamics from the Nuclear to the Biological Scale*, ed. by J.-P. Connerade and A. V. Solov'yov, Imperial College Press (2008), p. 297.
12. P. I. Yatsyshin, R. G. Polozkov, V. K. Ivanov, and A. V. Solov'yov, Phys. Scr. **80**, 048126 (2009); П. И. Яцышин, В. К. Иванов, Р. Г. Полозков, А. В. Соловьев, Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физ.-матем. науки, № 1 (73), с. 9 (2009).
13. W. A. de Heer, Rev. Mod. Phys. **65**, 611 (1993).
14. В. К. Иванов, В. А. Харченко, А. Н. Ипатов, М. Л. Жижин, Письма в ЖЭТФ **60**, 345 (1994).
15. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика, т. 3. Квантовая механика. Нерелятивистская теория*, Наука, Москва (1989).
16. М. Я. Амусья, В. К. Иванов, Н. А. Черепков, Л. В. Чернышева, *Процессы в многоэлектронных атомах*, Наука, Москва (2006).
17. C. Möller and M. S. Plesset, *Note on an Approximation Treatment for Many-Electron Systems*, Phys. Rev. **46**, 618 (1934).
18. C. Guet and S. A. Blundell, Surf. Rev. Lett. **3**, 395 (1996).
19. А. Н. Ипатов, Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физ.-матем. науки, № 1 (165), 60 (2013).
20. P. Ring and P. Schuck, *The Nuclear Many-Body Problem*, Springer-Verlag, Berlin (2004).
21. C. de Boor, *A Practical Guide to Splines*, Springer-Verlag, New York (1978).