

Raport de fază

Contract nr. 120/16.09.2019 *Calcul cuantic cu superpoziții de stări coerente / Quantum Computation with Schrodinger cat states*

Cod depunere: PN-III-P3-ERA-NET Cofund Quantum Technologies QuCos

Etapa 3: Determinarea prin DFT a contribuțiilor entropice și a dependenței de temperatură în vederea îmbunătățirii modelelor experimentale dezvoltate de partenerii din consorțiu

Perioada: 01/01/2022 - 31/12/2022

Cuprins

1 Activități propuse în planul de realizare și rezultate estimate	1
1.1 Activități propuse	1
1.2 Rezultatele estimate ale etapei	1
1.2.1 Rezultate stiintifice	1
1.2.2 Dezvoltare de cod	1
1.3 Activități de diseminare	1
2 Rezumatul etapei	2
2.1 Setup computațional	2
2.2 Analiza geometrica	5
2.2.1 Raportul dintre O/Al functie de tipul de suprafata	5
2.2.2 Analiza lungimilor legaturilor din stratul de Al ₂ O ₃	5
2.2.3 Adancimea de penetrare a O in suprafata	7
2.2.4 Compozitia chimica a sistemelor in functie de tipul de suprafata	7
2.2.5 Grosimea relativă a stratului de Al ₂ O ₃ in functie de tipul de suprafata	8
2.2.6 Analiza omogeneitatii stratului de Al ₂ O ₃ functie de tipul de suprafata	9
2.3 Calcularea proprietăților termodinamice ale sistemelor	10
2.3.1 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(111) ideale	13
2.3.2 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(111) cu defecte	13
2.3.3 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(100) ideale	15
2.3.4 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(100) cu defecte	15
2.4 Concluzii	16
3 Activități suport	17
3.1 Întâlniri de lucru, conferinte si workshopuri	17
3.2 Publicatii	18
3.3 Dezvoltare de cod	18
4 Rezumat executiv al activităților realizate în perioada de implementare	20

1 Activități propuse în planul de realizare și rezultate estimate

1.1 Activități propuse

Etapa 3 prevede determinarea computationala a contributiilor entropice (vibrationale) pentru o serie de sisteme, precum si dependenta acestora de temperatura.

Activitatile stiintifice prevazute au fost realizate integral:

1. A3.1 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(111) ideale; Elaborarea unui model si calcule de dinamica DFT pentru Oxigen adsorbit pe suprafete de Al(111) ideale.
2. A3.2 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(111) cu defecte ; Elaborarea unui model si calcule de dinamica moleculara DFT pentru Oxigen adsorbit pe suprafete de Al(111) cu defecte.
3. A3.3 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(100) ideale; Elaborarea unui model si calcule de dinamica moleculara DFT pentru Oxigen adsorbit pe suprafete de Al(100) ideale.
4. A3.4 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(100) cu defecte; Elaborarea unui model si calcule de dinamica moleculara DFT pentru Oxigen adsorbit pe suprafete de Al(100) cu defecte.

1.2 Rezultatele estimate ale etapei

1.2.1 Rezultate stiintifice

Rezultatele prevazute in Etapa 3 sunt Contributiile entropice (vibrationale) calculate pentru fiecare din cazurile investigate anterior si dependenta lor de temperatura. In urma implementarii activitatilor 1-4 au rezultat modele numerice pentru suprafete de Al ideale si cu defecte in simetrie (111) si (100).

1.2.2 Dezvoltare de cod

1. In codul dezvoltat in etapele anterioare ale proiectului (RLAT2.0) au fost modificate si îmbunătățite unele rutine si subrutine pentru a permite procesarea avansata a datelor, conform cu activitatile prevazute in aceasta etapa.
2. A fost dezvoltat un cod nou (v-therm) care permite calcularea si analiza parametrilor de vibratie ai sistemelor.

1.3 Activități de diseminare

- Publicații și articole: 1 articol ISI, 1 articol BDI (IEEE) publicate; 1 articol in lucru (PRB)
- Participări la evenimente stiintifice: 4 participari la conferinte (3 comunicari orale si 1 poster)
- Altele: 2 intalniri in consorciu (1 fizic si 1 online); 2 vizite de lucru ale partenerului KIT la ITIM; 1 comunicare orala la workshop

2 Rezumatul etapei

In urma implementarii activitatilor prevazute in Etapa 3 a proiectului au rezultat date numerice care caracterizeaza o serie de sisteme, respectiv suprafete de aluminiu ideale si cu defecte in simetrie (111) si (100), corespunzand activitatilor A3.1-A3.4 ale proiectului. Intrucat aceste rezultate sunt seturi de date similare pentru sisteme diferite si pot fi comparate direct, rezultatele analizei de structura vor fi prezentate si discutate atat defalcat, conform fiecarei activitati prevazute in planul de realizare, cat si in paralel, in mod comparativ.

A fost abordata o serie larga de modele (structuri) geometrice care simuleaza cazuri specifice de interes pentru partenerii din consorciu din zona de experiment (ENSL, UIBK, KIT). In acest sens, modelele au fost construite astfel incat sa acopere doua seturi de experimente: suprafete libere si respectiv configuratie in multilayer. Suprafetele libere reprezinta cazuri concrete de structuri la nivel atomic identificate pe suprafata grauntilor de aluminiu granular (grAl) si vor fi utilizate la evaluarea stabilitatii diferitelor configuratii de Al. Suprafetele in multilayer corespund unor jonctiuni Josephson realiste si permit evaluarea stabilitatii structurale a jonctiunilor utilizate de parteneri.

Analiza numerica a acestor modele permite evaluarea energiei implicate in formarea invelisului de Al₂O₃. Aceasta corespunde energiei libere calculate in urma analizei vibrationale pentru fiecare structura investigata. Reamintim ca formarea legaturilor Al-O pe suprafetele de Al este un proces cu o pondere mare de efecte aleatorii influentate de structura geometrica si chimica a materialului, de temperatura de formare si/sau de presiune. Asadar investigarea acestora se realizeaza prin utilizarea unor force-fields de tip ReaxFF [1] care sunt direct comparabile cu metodele ab-initio clasice. Force-field-urile ReaxFF descriu interactiunile atom-atom similar metodelor ab-initio, permitand in acelasi timp utilizarea unor modele relativ largi. In ReaxFF potentialul interatomic descrie evenimente reactive printr-un formalism al ordinelor de legatura, unde ordinea de legatura este calculata empiric pe baza distantei interatomice. Interactiunile electronice care guverneaza legatura chimica sunt tratate implicit, permitand simularea chimiei reactiei fara a lua in considerare in mod explicit partea de QM.

Analiza dinamicii de formare a layerului de Al₂O₃ porneste de la monitorizarea lungimii legaturilor Al-O din suprafata. Aceste lungimi de legaturi sunt implicit asociate tariei legaturii chimice Al-O in diverse configuratii (bulk, suprafata, etc). Prin transformare Fourier acestea ofera informatii asupra modului de vibratie Al-O (i.e. componenta de stretching vibrational), corespunzand investigarii directe a tariei legaturii interatomice. Analiza energiei vibrationale a acestor legaturi la diverse temperaturi permite elaborarea unor modele calitative privind dinamica formarii Al-O pe suprafete de Al prin calcularea Entropiei, si respectiv a Energiei libere.

2.1 Setup computațional

Calculele de dinamica moleculara (MD) au la baza forcefield-uri ReaxFF dezvoltate de Hong si van Duin [2]. Campul de forte ReaxFF permite atat descrierea modului in care disociaza moleculele de oxigen pe suprafata cat si formarea de noi legaturi (i.e. Al-O). Acestea sunt implementate in codul Gulp [3] care a fost utilizat pentru toate simularile prezentate in acest studiu. Procesarea de date, analiza structurala si analiza vibrationala au fost realizate utilizand codurile dezvoltate de noi in cadrul acestui proiect (RLAT2.0 pentru analiza geometriei structurilor si respectiv v-therm pentru analiza vibrationala). Reprezentarea in format grafic a datelor s-a realizat cu ajutorul xmGrace [4] si gnuplot [5]. Reprezentarea vizuala structurilor s-a realizat cu xcrysden [6] si [7].

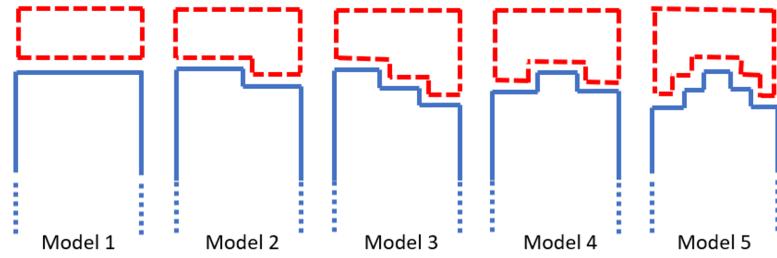


Figura 1: Modelele computationale contin $12 \times 12 \times 20$ atomi de Al si 1500 atomi de O. Substratul de aluminiu a fost generat in doua simetrii, respectiv Al(111) si Al(100). Modelul 1 descrie o suprafata ideală netedă, Modelele 2 si 3 prezinta defecte de tip treapta, iar Modelele 4 si 5 au defecte de tip insula. Modelele 2-5 simuleaza ”cazuri reale” de suprafete rugoase de aluminiu.

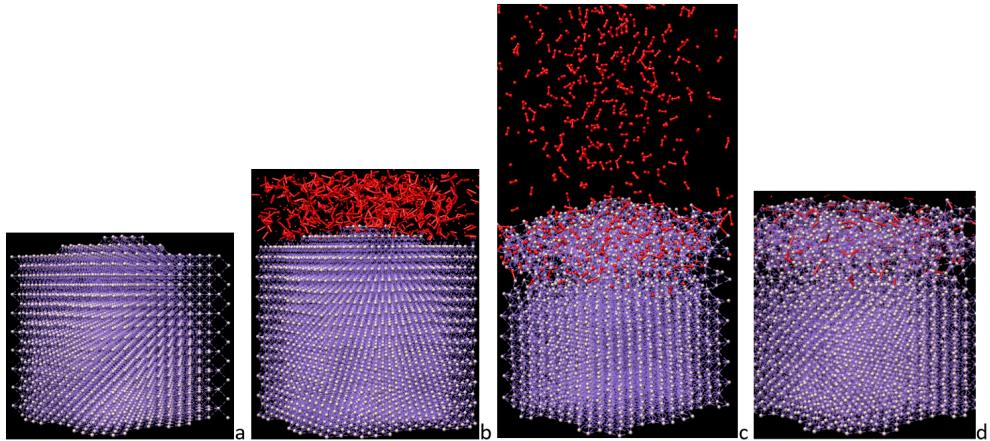


Figura 2: Etapele creerii modelelor de dinamica moleculara. Imaginea prezinta un model de tip Al(100). (a) constructia initiala a unui Model 5 (insula dubla) din Al. (b) 1500 de atomi de oxigen sunt adaugati random modelului; distanta minima intre atomii de Al si cei de O este de 1 \AA iar cea maxima de 10 \AA . (c) sistemul astfel construit este propagat 1500 pasi de dinamica moleculara Verlet la 300 K , cu o lungime de timp a pasului de 2 fs . (d) oxigenul liber este indepartat din sistem, rezultand in structuri de aluminiu invelite intr-un strat de Al_2O_3 care vor fi utilizate mai departe in configuratie de suprafata simpla sau de jonctiune pentru evaluarea parametrilor geometrici si a energiei libere.

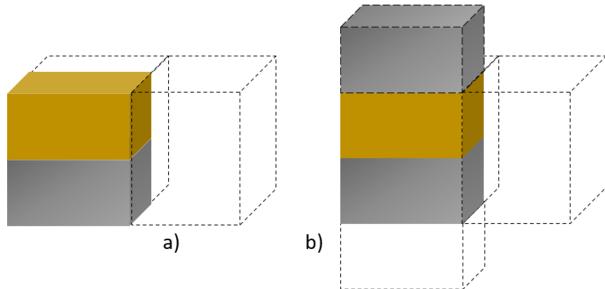


Figura 3: Aceste configuratii au fost construite pentru toate tipurile de suprafete. In imagine este prezentat Modelul 1 (suprafata neteda ideală) în cele două configurații: (a) modelul supratafa simulează layerul de Al_2O_3 care se formează în mod natural pe suprafetele de Al; (b) configurația multilayer, simulează o jonctiune realistă. Zona gri indică schematic substratul de Al iar cu galben este indicat stratul de Al_2O_3 . Liniile punctate indică direcțiile în care expandează sistemul în mod infinit, în conformitate cu condițiile la limita selectată.

Au fost generate suprafete de tip Al(111) și Al(100) ideale și cu mai multe tipuri de defecte (structura de treapta sau de insula), asa cum este prezentat schematic in figura 1. Acestor structuri li s-a permis să interacioneze cu atomii de oxigen în stare gazoasă, care au fost plasati în topul acestor structuri initiale de Al. Parametrul de bulk al aluminiului este 4.027 \AA (valoarea experimentală). Raportul initial dintre O și Al este aproximativ $1/2$, adica oxigenul initial reprezinta o treime din numarul total de atomi din sistem ($12 \times 12 \times 20 = 2880$ atomi de Al si 1500 atomi de O). Toate modelele au fost calculate cu acelasi numar initial de atomi de oxigen, si la aceeasi temperatura (300 K) si presiune (1 atm).

Fiecare sistem (baza de aluminiu si cei 1500 atomi liberi de oxigen din setupul initial) a fost propagat la 300 K utilizand un algoritm de tip Verlet timp de 3ps , cu un interval intre pasii de dinamica moleculara de 2fs . In aceasta etapa aluminiul inglobeaza atomii de O. Intrucat pe noi ne intereseaza doar structura solida obtinuta, atomii de oxigen care au ramas nelegati sunt indepartati dupa terminarea acestui ciclu de dinamica Verlet. Detalii pot fi urmarite in figura 2.

Toate aceste sisteme, adica 10 modele ideale sau cu diferite defecte, corezpunzand unor substrate de Al in simetrie (100) si (111) acoperite de oxid de aluminiu, in doua configurații asa cum este descris in figura 2 au fost in continuare propagate timp de 4ps in dinamica moleculara Verlet la 300 K cu un pas de timp de 2 fs . Cele doua configurații, descrise in figura 3 corespund suprafetei plane si respectiv multilayer. In aceasta etapa configurațiile geometrice au fost salvate la fiecare pas, pentru a constitui baza de date pentru analiza de structura si analiza vibrationala.

Configurația (a) din figura 3 presupune condiții la limita ale celulei unitate in directia x si y; in acest caz $z=\text{infinit}$ (simulare de tip 2D), ceea ce inseamna ca nu exista nici un fel de interactiune intre ultimul strat de Al bulk si primul strat de Al_2O_3 . Configurația (b) in multilayer (jonctiune) presupune condiții la limita ale celulei unitate in toate cele trei directii, x, y, z; in acest caz $z=40 \text{ \AA}$, care implica interactiune dinamica intre ultimul strat de Al si layerul de Al_2O_3 .

Datele de dinamica moleculara Verlet ale tuturor acestor sisteme au fost stocate si procesate cu cele două coduri realizate de noi: RLAT2.0 pentru analiza structurala si v-therm pentru analiza vibrationala.

2.2 Analiza geometrica

Intrucat ideea de baza a proiectului QuCos ITIM este realizarea unor simulari realiste, care sa descrie sistemele experimentale construite de partenerii din consorciu, sistemele create si analizate sunt relativ mari, continand in medie 3500 atomi (Al si O). Asadar analiza geometrica a sistemelor obtinute este completata de analiza statistica. Analiza statistica a lungimilor de legatura Al-O ofera informatii despre rezistenta legaturilor: legaturile mai lungi sau mai scurte indica legături mai slabe sau mai puternice. Acestea sunt direct corelate cu frecventa de vibratie a modului de stretching al legaturilor Al-O. Pentru acest tip de analiza am utilizat RLAT2.0, cod in-house a carei dezvoltare a fost initiata in etapa 1 si care a fost imbunatatit constant pe parcursul proiectului.

2.2.1 Raportul dintre O/Al functie de tipul de suprafata

Toate sistemele au pornit initial de la acelasi numar de atomi de O, respectiv 1500. Acest numar a insemnat un raport initial de 1:2 intre atomii de Al si O. Dupa efectuarea celor 2048 pasi de relaxare MD, se observa ca exista diferente majore intre cele doua tipuri de simetrie structurala (tabelul 1). In medie, Al(100) accepta cu pana 2 % mai mult O, unde procentul se refera la volumul total de material. De asemenea, se mai observa ca suprafetele cu defecte accepta mai mult O. In fapt, cu cat suprafata este mai deformata, cu atat este dispusa sa inglobeze mai mult O.

Model	Al(100)	Al(111)
Model 1	15.97	13.88
Model 2	14.30	15.02
Model 3	15.40	13.76
Model 4	15.69	14.67
Model 5	19.94	15.38
Average	16.26	14.54

Tabelul 1: Raportul final O/Al dupa inglobarea oxigenului gazos de catre substratul de aluminiu. Datele acopera toate modelele Model 1 - Model 5 (de la suprafata neteda ideală pana la rugozitate de tip insula dubla) cu aluminiu in simetrie (100) si (111). Toate valorile sunt exprimate in %.

2.2.2 Analiza lungimilor legaturilor din stratul de Al₂O₃

Din tabelul 2 se observa ca lungimile legaturilor Al-O sunt apropiate ca valoare, usor mai mari pentru Al(111), i.e. 1.96 ± 0.16 comparativ cu 1.95 ± 0.17 pentru Al(100). Totusi, din figura 2.2.2 se remarcă unele diferențe evidente. În primul rand, lungimea Al-O este mai mare cu aproximativ 0.1 Å în Al₂O₃ format în jonctiuni comparativ cu stratul format la suprafata. Acest lucru indică o usoara instabilitate (tensiune) în jonctiuni și deci o oarecare disponibilitate spre modificarea structurala. De asemenea, din lungimile Al-O formate pe Al(111) anticipam o energie libera mai mare pentru acest tip de suprafata comparativ cu Al(100). Cu exceptia modelului 5 (insula dubla), se observa ca lungimile legaturilor Al-O sunt mai omogene in cazul suprafetei comparativ cu modelul in multilayer.

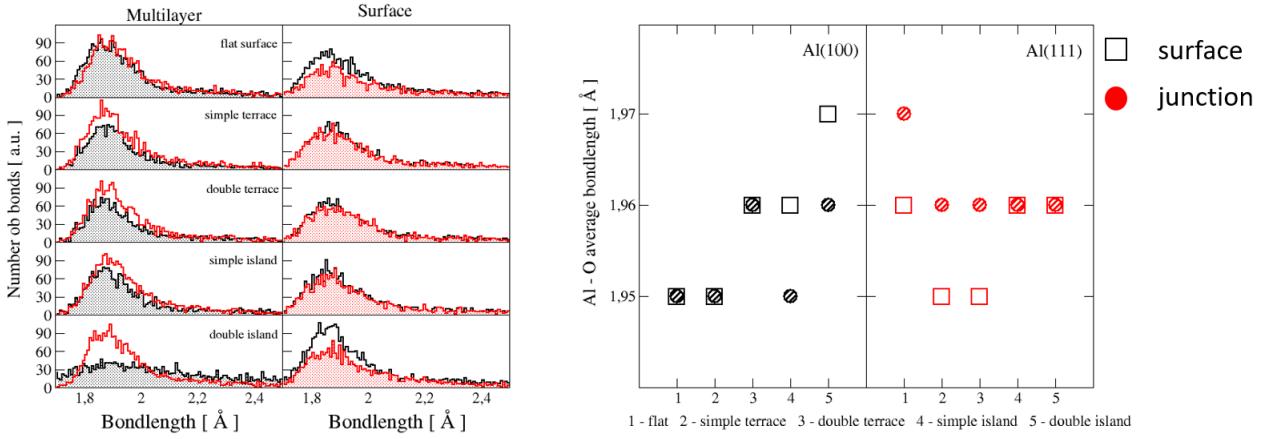


Figura 4: Stanga: histograma lungimii legaturilor pentru toate configuratiile investigate. Cu negru sunt prezentate datele pentru Al(100) si cu rosu pentru Al(111). Legaturile formate in stratul Al₂O₃ sunt mai omogene in cazul suprafetelor libere comparativ cu modelul de jonctiune. Modelul cel mai rugos - Modelul 5 - prezinta si cea mai mare plaja de lungimi de legatura. Dreapta: valoarea medie a lungimilor legaturilor Al-O. Pe suprafata de Al in simetrie(111) se formeaza in medie legaturi cu 0.1 Å mai lungi decat in simetria (100). Toate valorile de lungimi de legaturi sunt in exprimate Å.

Model	Al(100) jonctiune	Al(100) suprafata	Al(111) jonctiune	Al(111) suprafata
Model 1	1.95 ± 0.15	1.95 ± 0.16	1.96 ± 0.14	1.97 ± 0.17
Model 2	1.95 ± 0.15	1.95 ± 0.16	1.95 ± 0.15	1.96 ± 0.17
Model 3	1.96 ± 0.16	1.96 ± 0.17	1.95 ± 0.15	1.96 ± 0.17
Model 4	1.96 ± 0.16	1.95 ± 0.17	1.96 ± 0.14	1.96 ± 0.17
Model 5	1.97 ± 0.16	1.96 ± 0.17	1.95 ± 0.15	1.96 ± 0.17

Tabelul 2: Valoarea medie a lungimii legaturilor Al-O (distanta medie de coordinare) pentru toate modelele: Modelul 1 - Modelul 5 pe suprafata de aluminiu in simetrie (100) si (111) in configuratie de suprafata sau jonctiune. Pe suprafata cu simetrie (111) lungimea medie a legaturii Al-O este 1.96 ± 0.16 comparativ cu 1.95 ± 0.17 lungimea medie a legaturii Al-O pe suprafata cu simetrie (100). Toate valorile sunt exprimate in Å.

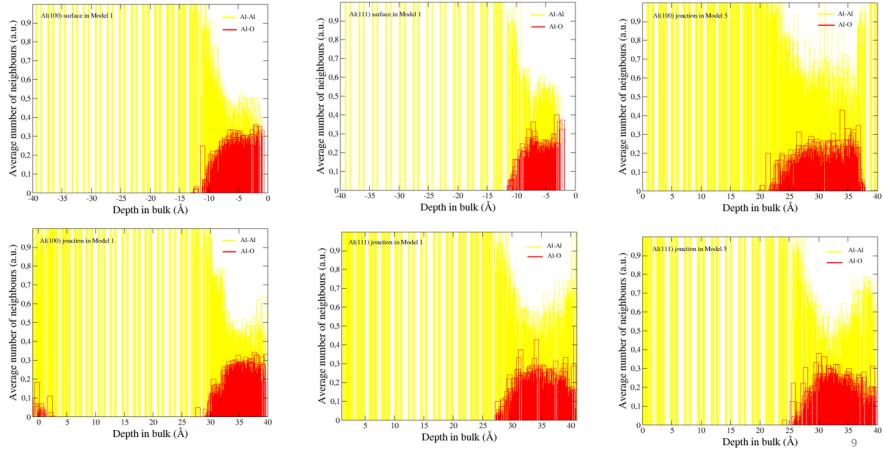


Figura 5: Histogramele numarului de legaturi de tip Al-Al (galben) si respectiv O-Al (rosu) in functie de adancimea la care se gasesc in bulk. Toate valorile de lungimi de legaturi sunt in Å.

2.2.3 Adancimea de penetrare a O in suprafata

Pentru realizarea acestui tip de analiza codul RLAT2.0 a fost completat cu inca o functionalitate care calculeaza histogramele pentru numarul de legaturi de un anumit tip in functie de adancimea la care se afla atomii in structura. Concret, in acest caz am urmatit pana la ce adancime in bulk identificam atomi de oxigen si in ce procent in raport cu numarul de atomi de Al. In figura 5 se observa ca O patrunde in bulkul de aluminiu in mod diferit functie de tipul de suprafata, Al(100) sau Al(111). In suprafata cu simetrie (100) O patrunde in medie pana la 15 Å cu 2-3 Å mai mult decat in supfata cu simetrie (111). De asemenea, adancimea de penetrare depinde si de configuratia geometrica a sistemului (layer sau jonctiune). Astfel, corelat cu lungimea mai mare a legaturilor si cu numarul de atomi de O acceptati de structura, modelele jonctiune formeaza layere de Al₂O₃ de legatura intre stratele de Al mai mari decat suprafetele simple.

Ca regula generala, O patrunde mai adanc in jonctiune (la suprafata stratul de Al₂O₂ este mult mai compact), si de asemenea penetreaza mai adanc suprafetele de tip (111).

2.2.4 Compozitia chimica a sistemelor in functie de tipul de suprafata

Pentru a realiza analiza de componetie in structuri, codului RLAT2.0 i-a fost adaugata o functionalitate care calculeaza numarul de legaturi pe care le realizeaza fiecare atom de Al din sistem si le clasifica in functie de numarul si de tipul de vecini, astfel:

Consideram ca

- un atom de Al este metalic daca este inconjurat in proportie de 100% de alti atomi de Al
- un atom de Al este suboxid daca este inconjurat in proportie de 60-90% de atomi de Al si in proportie de 10-30% de atomi de O
- un atom de Al este oxid daca este inconjurat in proportie de 40-60% de atomi de Al si 40-60% atomi de O

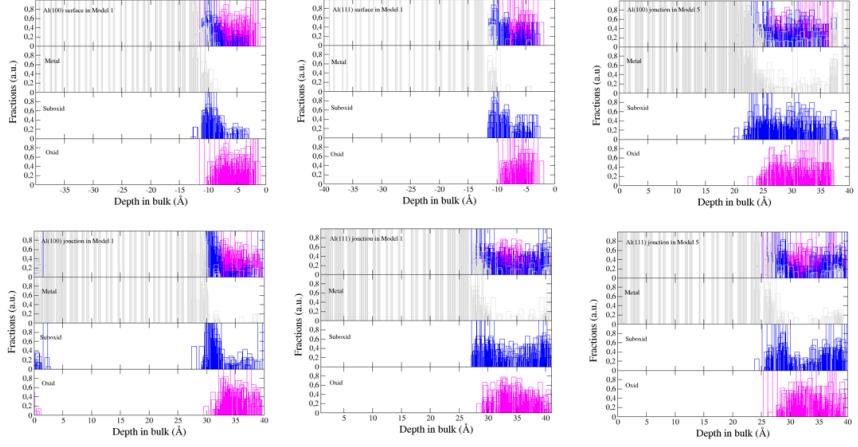


Figura 6: Histogramele tipului de atomi de aluminiu (metalic, suboxid, oxid) in functie de adancimea la care se gasesc in bulk. Toate valorile de lungimi de legaturi sunt in \AA .

Aceste rezultate sunt reprezentate grafic in functie de adancimea la care se gasesc in bulk (histograma tipului de atom in functie de adancimea la care se afla in bulk, i.e. coordonata atomului pe axa z a sistemului). Se observa ca Al(111) contine mai mult oxid comparativ cu Al(100), iar acest lucru ar putea sa explice grosimea mai mare a stratului de Al_2O_3 formata pe Al(111). De asemenea, jonctiunile, care au si un grad mai mare de dezordine (o plaja mai larga de lungimi de legaturi) contin mai mult oxid si suboxid comparativ cu suprafetele, care au zona de Al_2O_3 repativ compacta si omogena si un procent mai mare de atomi de Al metalici. Acest lucru este direct corelat cu lungimea legaturilor de Al-O, mai mare in cazul jonctiunilor. Tot in figura 6 se observa o dependenta a compozitiei sistemului de calitatea initiala a suprafetei (ne referim aici la rugozitate). La fel ca in cazul celorlalte analize, cu cat suprafata este mai rugoasa, cu atat bulkul contine mai mult oxid si suboxid. In compensatie, Al metalic este predominant in suprafetele netede si ideale.

2.2.5 Grosimea relativă a stratului de Al_2O_3 in functie de tipul de suprafata

Grosimea stratului de aluminiu a fost calculata pentru toate tipurile de structuri in ambele configuratii, suprafata libera si jonctiune, ca diferența dintre coordonatele primului si ultimului atom care il formeaza. In medie, stratul de Al_2O_3 format pe Al(111) este cu 2 \AA mai gros decat cel format pe Al(100), asa cum se poate observa in figura 7. Acest lucru este surprinzator avand in vedere ca Al(111) accepta in general mai putini atomi de O decat suprafata in simetrie (100). Diferenta de lungime a legaturilor de Al-O formate pe cele doua tipuri de suprafata - reamintim la pe suprafata (111) lungimile sunt in medie cu 0.1 \AA mai mari decat pe suprafata (100) - nu este suficienta pentru a explica o diferența in grosimea stratului de pana la 2 \AA . O posibila explicatie ar veni mai degraba din analiza de structura si de componitie a sistemelor, de unde reiese un procentaj mai mare de oxid si suboxid pe suprafetele (111). Acest lucru explica si procentul mai mic de O absorbit: procentul mai mare de Al metalic (care e puternic organizat si ocupa un volum mai mic) in sistemele (100) inseamna mai putini atomi de Al dispuși sa formeze legaturi cu O, deci un strat de Al_2O_3 mai redus comparativ cu suprafata (111). De asemenea, mici diferente de structura apar si in volumul de odix si suboxid format: suprafata (111) are este mai dispusa sa formeze oxid, pe cand suprafata (100) va fi mai predispusa sa ramana in starea fundamentala (metal)

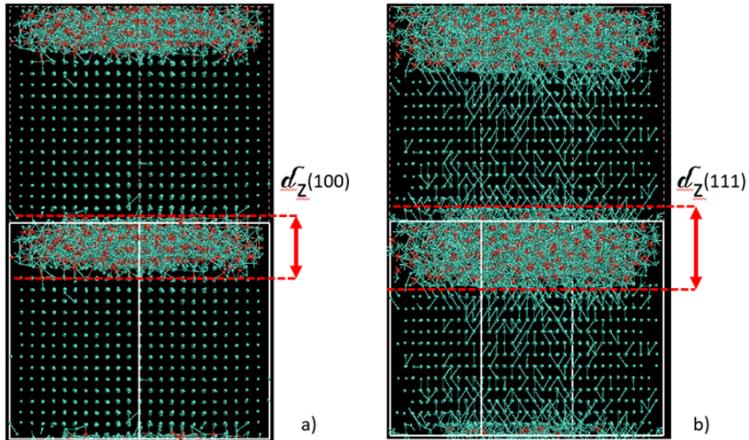


Figura 7: Modelul 1 - suprafata ideală netedă - în multilayer (jonctiune) pentru (a) Al(100) și (b) Al(111). Stratul format pe supratafa de Al(111) este cu pana la 3.5 Å mai gros comparativ cu cel format pe Al(100).

sau să formeze suboxid (între 10-30% atomi vecini de O pentru atomii de Al). Corelat cu lungimile de legături și cu adâncimea de patrundere a O, grosimea stratului Al₂O₃ depinde și de calitatea suprafetelor. Cu cat suprafata este mai rugoasa, cu atat absorbe mai mult oxigen și în consecință are o grosime mai mare.

Model	Al(100) jonctiune	Al(100) suprafata	Al(111) jonctiune	Al(111) suprafata
Model 1	11.94	10.24	15.61	10.63
Model 2	13.31	8.40	16.37	10.10
Model 3	13.53	9.78	15.82	9.80
Model 4	13.80	10.06	16.90	9.87
Model 5	14.84	10.81	17.08	11.85
Average	14.48	9.86	16.36	10.45

Tabelul 3: Grosimea stratului de Al₂O₃ pentru toate cele 20 modele investigate. Este calculată ca diferență dintre poziția pe axa z a primului și ultimului atom care formează stratul de Al₂O₃. Pentru detalii vezi figura 7. Toate valorile sunt exprimate în Å.

2.2.6 Analiza omogeneității stratului de Al₂O₃ funcție de tipul de suprafată

Analiza omogeneității stratului de Al₂O₃ este de ordin calitativ. În figura 8 este prezentat Modelul 3 pe suprafata Al(100) pe axa z și în planul xOy. Se observă că stratul de Al₂O₃ nu este omogen, mai degrabă urmărește inomogeneitate (rugozitate) structurii de aluminiu initiale. De asemenea, în planul xOy se observă existența unor suprafete de Al care nu sunt acoperite de Al₂O₃ (un fel de "goluri" în structura de Al₂O₃). Aceste goluri apar chiar și pe structurile ideale de Al(100), cum este în acest caz Modelul 1. În mod contrar, suprafata cu simetrie (111) are un comportament cu totul opus. Aceste goluri de formare a stratului Al₂O₃ nu se observă nici macar pe suprafetele rugoase. În Figura 8 este prezentat modelul care are stratul de Al₂O₃ cel mai neomogen dintre toate modelele investigate (Modelul 3). Se observă că diferențele față de modelul cel mai omogen (Modelul 1 - suprafata ideală netedă) sunt minime. Acest lucru poate fi explicat parțial prin grosimea mai mare a

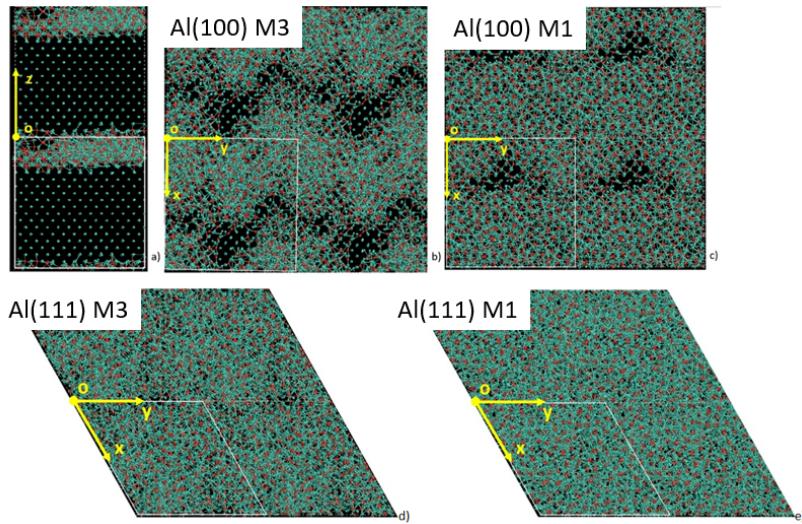


Figura 8: Modelul 3 - terasa dubla - in multilayer (jonctiune) din lateral si de sus pe suprafata de Al(100). Modelul 1 - suprafata ideală - pe Al(100) prezinta de asemenea inomogeneitati. In comparatie, stratul de Al₂O₃ format pe Al(111) este relativ omogen chiar si atunci cand se formeaza pe cea mai rugoasa suprafata - Modelul 3.

stratului de Al₂O₃ care se formeaza pe substratul cu simetrie (111). Totusi, nu explica de ce aceste goluri apar pe suprafata (100) perfecta. Trecem in continuare la analiza proprietatilor termodinamice ale sistemelor care ofera lumina asupra entropiei sistemelor si a energiei libere de formare.

2.3 Calcularea proprietăților termodinamice ale sistemelor

Frecventa de vibratie a modului de stretching al legaturilor Al-O este o masura relativ directa de analiza a tipului de legatura: cresterea sau scaderea frecventei indica o legatura mai puternica/mai slaba. Cu cat interacțiunea dintre atomi este mai puternica, cu atat frecventa de vibratie creste. Din analiza VbDOS se poate calcula entropia sistemului, care la randul ei conduce la calcularea energiei libere. Aceasta energie libera reprezinta energia disponibila in sistem pentru a efectua lucru mecanic, adica torsioni, modificari de forma ale structurii, migratii ale atomilor. Cu alte cuvinte, analiza acestor energii conduce la evaluarea stabilitatii structurale a sistemelor si la descrierea modului de formare al Al₂O₃.

Energia libera se exprima ca

$$G = U + pV - TS \quad (1)$$

unde U - energia interna (suma gradelor de libertate electronic & vibrational & translational); p - presiune, V - volum, S - entropie iar T este temperatura. Daca $pV = \text{constant}$, $\Delta G = \Delta F$ (energia libera Helmholtz), unde F este

$$F = U - TS \approx U_{el} + U_{vib} - TS \quad (2)$$

(i.e. gradele de libertate vibrationale si electronice sunt dominante fata de alte efecte termodinamice).

Densitatea de stari vibrationale (VbDOS) $\mathcal{D}(\omega)$ este asadar definita ca in ecuatia [9]

$$\mathcal{D}(\omega) = \frac{2}{kT} \sum_{j=1}^N \sum_{\alpha=1}^3 m_j \delta_j^\alpha(\omega) \quad (3)$$

unde m_j este masa atomului cu indicele j ; α este indicele coordonatei Carteziene.

Densitatea spectrala $\delta_j^\alpha(\omega)$ este determinata de patratul transformatiei Fourierie a vitezelor [9]

$$\delta_j^\alpha(\omega) = \lim_{\tau \rightarrow \infty} \frac{1}{2\tau} \left| \int_{-\tau}^{\tau} v_j^\alpha(t) e^{-i2\pi\omega t} dt \right|^2 \quad (4)$$

Densitatea de stari vibrationale (VbDOS) se poate calcula din aceste relatii in urma inregistrarii configuratiei geometrice a sistemului in fiecare pas al simularii de dinamica moleculara.

O proprietate importanta este ca integrala pe toate starile vibrationale este definita prin relatia

$$\int_0^\infty \mathcal{D}(\omega) d\omega = 3N \quad (5)$$

unde N este numarul atomilor din sistem.

Asadar din VbDOS pot fi extrase proprietatile termodinamice corelate cu gradele de libertate vibrationale, tinand cont ca functia de partitie Q a sistemului se poate calcula din functia de partitie a oscilatorului armonic q_{HO} (i.e. statistica Bose-Einstein a fononilor din sistem) [8, 9, 10]

$$\ln Q = \int_0^\infty \ln q_{HO} \mathcal{D}(\omega) d\omega \quad (6)$$

Entropia vibrationala este

$$S = k \ln Q + \beta^{-1} \frac{\partial \ln Q}{\partial T} \quad (7)$$

unde k - constanta Boltzmann, iar $\beta = kT$ si T - temperaturi.

Energia libera vibrationala (Helmholtz), F este:

$$F = U - TS \quad (8)$$

unde U este energia vibrationala totala si poate fi calculata ca integrala produsului dintre VbDOS si functia de partitie a starilor energetice in ecuatia 6.

Asadar intensitatea spectului IR la o frecventa data, ω , se extrage din transformata Fourier a functiei de corelare a momentului de dipol [11], iar acesta se defineste ca [11],

$$c_{dip}(t, 0) = \frac{\langle \mu_{tot}(t) \mu_{tot}(0) \rangle}{\langle \mu_{tot}(0) \mu_{tot}(0) \rangle} \quad (9)$$

unde $\mu(t)$ este momentul de dipol al sistemului la intervale succesive de timp.

Aceste notiuni au fost implementate ca rutine in codul v-therm dezvoltat in aceasta etapa a proiectului pentru a calcula parametrii vibrationali ai sistemelor investigate.

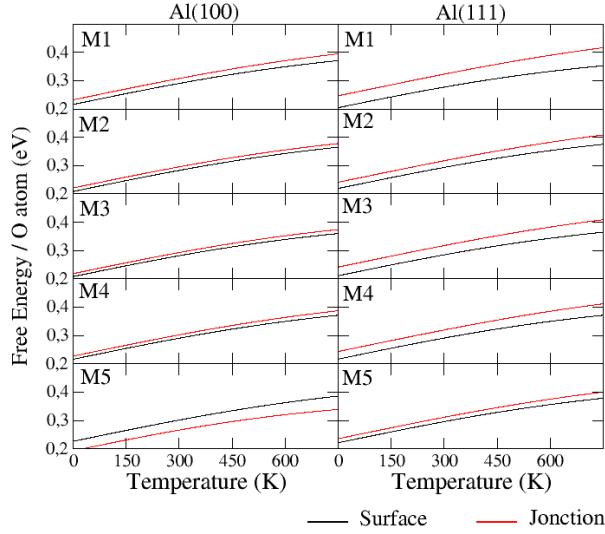


Figura 9: Energia libera de formare intre 0 si 600 K comparata pentru toate sistemele investigate. Valorile sunt prezentate per atom, si sunt exprimate in eV.

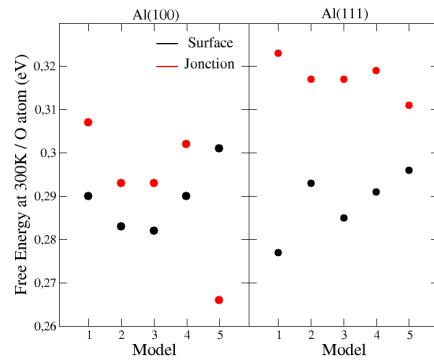


Figura 10: Energia libera de formare la 300 K pentru toate sistemele investigate. Valorile sunt prezentate per atom, si sunt exprimate in eV.

In Figura 9 sunt prezentate valorile calculate ale energiei libere a tuturor sistemelor. Aceste valori vor fi discutate in capitolul urmator in functie de fiecare suprafata, dar aici merita sa mentionam ca intotdeauna suprafetele libere sunt mai stabile comparativ cu jonctiunile, si de asemenea ca suprafetele cu simetrie (100) prezinta o stabilitate mai mare.

Figura 10 prezinta situatia acestor energii la temperatuta de 300 K. Se observa ca stabilitatea suprafetelor naturale la temperatura camerei este similara pentru cele doua tipuri de simetrie, dar ca exista diferente remarcabile in cazul jonctiunilor. Jonctiunile formate pe suprafata cu simetrie (111) au o energie libera per atom cu pana la 0.1 eV mai mare decat pe suprafata cu simetrie (100). De asemenea, se obserba o instabilitate mai ridicata in cazul suprafetelor netede, cu o stabilizare progresiva odata cu aparitia rugozitatilor. Putem specula ca aluminiul granular are ca punct de pornire in formarea sa clusteri cu simetrie preponderent (111).

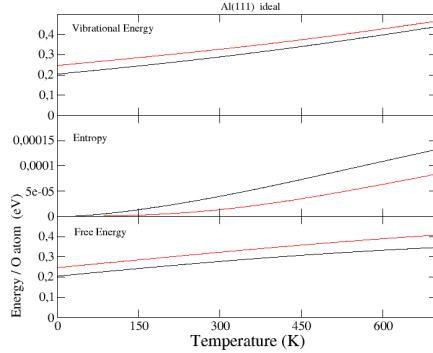


Figura 11: Energia de vibratie, Entropia si Energia libera calculate ca valoare medie / atom de O pentru atomii de pe suprafata (111) ideală. Cu rosu sunt prezentate valorile in configuratia jonctiune si cu negru in configuratia suprafata libera. Valorile sunt exprimate in eV.

2.3.1 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(111) ideale

Energia de vibratie calculata pentru atomii de O care formeaza Al₂O₃ pe suprafata ideală de tip (111) este prezentata in figura 11, panelul de sus. Se observa ca intensitatea vibratiilor este mai mare in cazul jonctiunii, comparativ cu suprafata libera. Totusi, aceasta energie nu descrie in mod direct stabilitatea sistemului. Aceasta este descrisa mai degraba de energia libera (panelul de jos) unde observam aceeasi tendinta: Oxidul de aluminiu format pe suprafata Al(111) ideală este mai stabil atunci cand se formeaza ca layer natural, pe suprafata libera decat atunci cand este implicat in formare de jonctiuni. Din analiza entropiei sistemelor se observa ca aceasta este de asemenea mai mare pentru Al₂O₃ format ca suprafata libera decat in jonctiune. Reamintim ca entropia este o proprietate care descrie dezordinea din sistem. Cu cat valoarea acesteia este mai mare (in acest caz sistemul in suprafata libera) cu atat sistemul este mai stabil.

2.3.2 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(111) cu defecte

Din analiza proprietatilor rezultate din dinamica moleculara a suprafetelor de Al(111) defecte (figura 12) se observa o stabilizare a tuturor sistemelor comparativ cu suprafata neteda ideală. De asemenea, se observa valori foarte apropiate intre cazurile de Al₂O₃ formate pe suprafata libera si in juctiune. Cu alte cuvinte, jonctiunile formate cu acest tip de material au o stabilitate ridicata, in orice configuratie. Analiza entropiei indica o stabilitate usor mai ridicata pentru suprafetele libere, dar diferența dintre cele două energii (per atom de oxigen) este sub 5e-6 eV. Din analiza tuturor tipurilor de defecte se observa o relativă stabilizare a sistemului pe masura ce defectele sunt tot mai pregnante. Cea mai mare stabilizare se observa in cazul Modelului 5 care, sub forma unei insule duble se apropie cel mai mult de formarea unui graunt (aluminiu granular). Din analiza tuturor acestor date, reiese ca stratul de Al₂O₃ evita sa se formeze pe suprafete ideale, si ca are tendinta naturala de a adera la suprafetele defecte si/sau sferice.

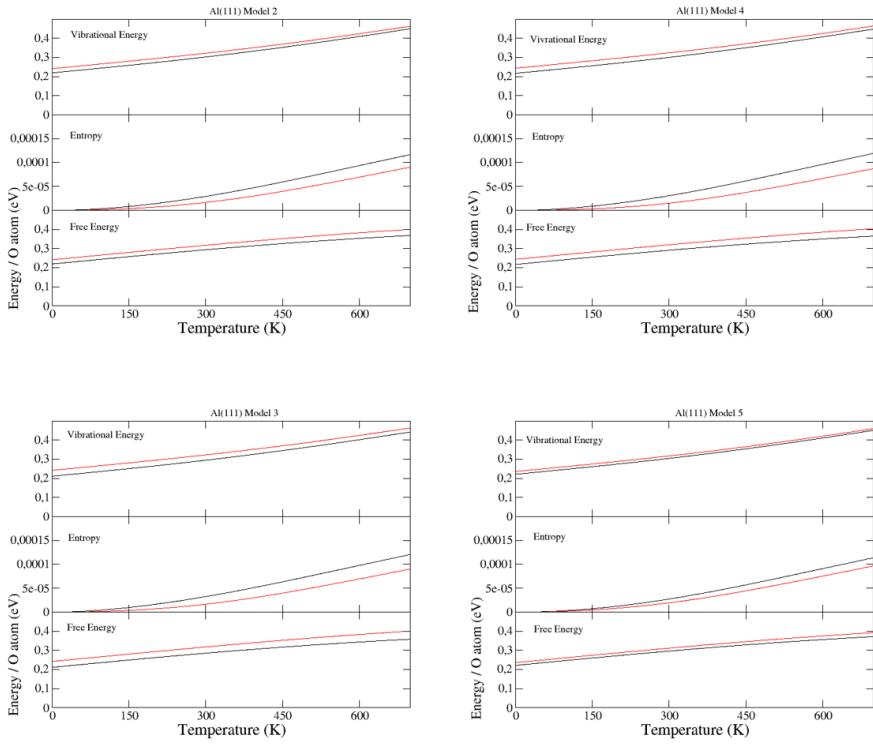


Figura 12: Energia de vibratie, Entropia si Energia libera calculate ca valoare medie / atom de O pentru atomii de pe suprafetele (111) cu defecte. Cu rosu sunt prezentate valorile in configuratia jonctiune si cu negru in configuratia suprafata libera. Modelul 2 corespunde unei rugozitati de tip terasa, Modelul 3 unei terase duble, Modelul 4 unei insule si Modelul 5 unei insule duble. Valorile sunt exprimate in eV.

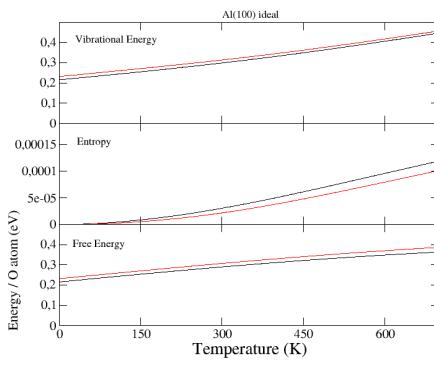


Figura 13: Energia de vibratie, Entropia si Energia libera calculate ca valoare medie / atom de O pentru atomii de pe suprafata (100) ideală. Cu rosu sunt prezentate valorile in configuratia jonctiune si cu negru in configuratia suprafata libera. Valorile sunt exprimate in eV.

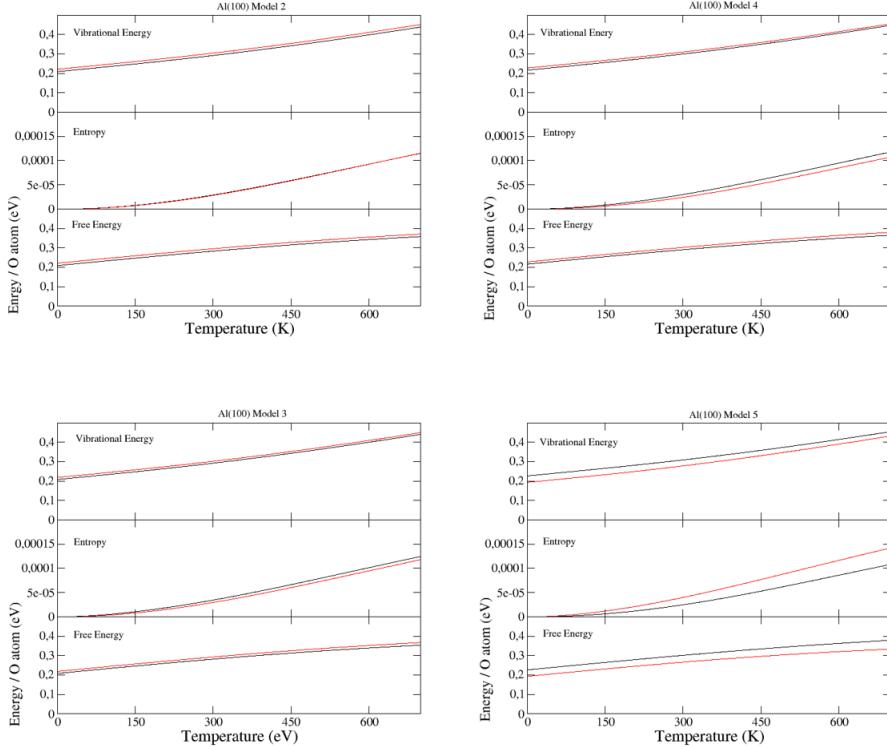


Figura 14: Energia de vibratie, Entropia si Energia libera calculate ca valoare medie / atom de O pentru atomii de pe suprafetele (100) cu defecte. Cu rosu sunt prezentate valorile in configuratia jonctiune si cu negru in configuratia suprafata libera. Modelul 2 corespunde unei rugozitati de tip terasa, Modelul 3 unei terase duble, Modelul 4 unei insule si Modelul 5 unei insule duble. Valorile sunt exprimate in eV.

2.3.3 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(100) ideale

Analiza dinamicii moleculare a atomilor de O din stratul Al₂O₃ de pe suprafete ideale (figura 13) de Al(100) arata o puternica stabilizare in comparatie cu Al(111). Exista diferente mult mai mici intre suprafata libera si jonctiune, atat in valorile energie de vibratie cat si in valorile energiei libere. In plus, in mod surprinzator in acest caz sistemele sunt mai stabile in jonctiune decat in suprafata libera, contrar tuturor celorlalte tipuri de sisteme investigate. Aceasta proprietate este descrisa si de entropia sistemului, mai mare in cazul suprafetei libere decat in cazul jonctiunii.

2.3.4 Dinamica moleculara a Oxigenului pe suprafete de Al(100) cu defecte

Similar cu stabilizarea sistemelor formate pe suprafata (100) ideală, se observa o stabilizare a tututor sistemelor formate pe suprafetele defecte comparativ cu sistemele formate pe suprafata (111). In cazul defectelor minore (terasa simpla, sau insula simpla), practic nu exista diferente intre valorile energiilor de vibratie si libere in jonctiune sau pe suprafetele plane ideale sau cu acest tip de rugozitati. Exista diferente, in principal in entropia sistemelor formate in jonctiune sau in plan la suprafetele cu defecte majore (insula dubla sau terasa dubla). Cea mai mare diferență in entropie se observa la formarea jonctiunilor in straturile cu defecte majore - insula dubla, care nu permit existenta unui strat de Al₂O₃ unoform si omogen. Ca remarca generala, Al₂O₃ este mai stabil

atunci cand formeaza pe suprafetele de Al(111), dar daca suprafetele prezinta rugozitati, atunci diferențele intre cele doua simetrii se reduc.

2.4 Concluzii

Au fost aplicate metode de calcul bazate pe pe câmpul de forțe ReaxFF pentru analiza structurilor de tip aluminiu - oxid de aluminiu depus pe suprafete ideale si cu defecte, in simetrie (100) si (111). Pentru realizarea acestor activitati s-au dezvoltat coduri informatice: v-therm a fost dezvoltat in aceasta etapa pentru analiza proprietatilor vibrationale iar codul RLAT2.0 dezvoltat in etapele anterioare a fost upgradat cu functionalizari suplimentare de analiza de structura.

In urma implementarii activitatilor A3.1-A3.4 au rezultat modele de formare a stratelor de Al₂O₃ ideale si cu defecte in simetrie (100) si (111), in configuratie de suprafata si de jonctiune. Din analiza raportul dintre O/Al functie de tipul de suprafata reiese ca exista diferente majore intre cele doua tipuri de simetrie structurala: in medie, Al(100) accepta cu pana 2 % mai mult O, unde procentul se refera la volumul total de material; suprafetele cu defecte accepta mai mult O - cu cat suprafata este mai deformata, cu atat este dispusa sa inglobeze O. Analiza lungimilor legaturilor din stratul de Al₂O₃ arata ca Al-O sunt apropiate ca valoare pe ambele tipuri de simetrii ale Al, i.e (111) si (100). Totusi, sunt unele diferente evidente: lungimea Al-O este mai mare cu aproximativ 0.1 Å in Al₂O₃ format in jonctiuni comparativ cu stratul format in suprafate; lungimile legaturilor Al-O sunt mai omogene in cazul suprafetelor comparativ cu modelele in multilayer. Analiza adancimii de penetrare a O in suprafata arata ca O patrunde in bulkul de aluminiu in mod diferit functie de tipul de simetrie: in suprafata cu simetrie (100) O patrunde in medie pana la 15 Å cu 2-3 Å mai mult decat in suprafata cu simetrie (111); adancimea de penetrare depinde si de configuratia geometrica a sistemului (layer sau jonctiune): modelele jonctiune formeaza layere de Al₂O₃ cu 2-3 Å mai groase decat suprafetele simple. Analiza compozitiei sistemelor arata ca Al(111) contine mai mult oxid comparativ cu Al(100), iar acest lucru poate explica grosimea mai mare a stratului de Al₂O₃ format pe Al(111). Jonctiunile contin mai mult oxid si suboxid comparativ cu suprafetele. Acest lucru este direct corelat cu lungimea legaturilor de Al-O, mai mare in cazul jonctiunilor. Exista o dependenta a compozitiei sistemului de calitatea initiala a suprafetei (ne referim aici la rugozitate). La fel ca in cazul celorlalte analize, cu cat suprafata este mai rugoasa, cu atat bulkul contine mai mult oxid si suboxid. In compensatie, Al metalic este predominant in suprafetele netede si ideale.

Din analiza grosimii relative a stratului de Al₂O₃ se observa ca, in medie, stratul de Al₂O₃ format pe Al(111) este cu 2 Å mai gros decat cel format pe Al(100). Aceste lucru explica si procentul mai mic de O absorbit: procentul mai mare de Al metalic (care e puternic organizat si ocupa un volum mai mic) in sistemele (100) inseamna mai putini atomi de Al dispusi sa formeze legaturi cu O, deci un strat de Al₂O₃ mai redus comparativ cu suprafata (111). De asemenea, mici diferente de structura apar si in volumul de oxid si suboxid format: suprafata (111) este mai dispusa sa formeze oxid, pe cand suprafata (100) este mai predispusa sa ramana in starea fundamentala (metal) sau sa formeze suboxid (intre 10-30% atomi vecini de O pentru atomii de Al). Corelat cu lungimile de legaturi si cu adancimea de patrundere a O, grosimea stratului Al₂O₃ depinde si de calitatea suprafetetei. Cu cat suprafata este mai rugoasa, cu atat absoarbe mai mult oxigen si in consecinta are o grosime mai mare.

Analiza homogeneitatii stratului de Al₂O₃ format pe cele doua tipuri de simetrii indica diferente majore: pe suprafata in simetrie (100) se observa existenta unor suprafete de Al care nu sunt acoperite de Al₂O₃, chiar si pe

suprafetele ideale, in vreme ce suprafata (111) este acoperita integral, chiar si in cazul in care este foarte rugoasa. Acest lucru poate fi explicat parcial prin grosimea mai mare a stratului de Al₂O₃ care se formeaza pe substratul cu simetrie (111).

Analiza proprietatilor vibrationale ale sistemelor arata ca stabilitatea suprafetelor libere la temperatuta camerei este similara pentru cele doua tipuri de simetrie, dar ca exista diferente remarcabile in cazul junctiunilor. Jonctiunile formate pe suprafata cu simetrie (111) au o energie libera per atom cu pana la 0.1 eV mai mare decat pe suprafata cu simetrie (100). De asemenea, exista o instabilitate mai ridicata in cazul suprafetelor netede, cu o stabilizare progresiva odata cu aparitia rugozitatilor. Putem specula ca aluminiul granular are ca punct de pornire in dormarea sa clusteri cu simetrie preponderent (111).

3 Activități suport

3.1 Întâlniri de lucru, conferinte si worshopuri

Întâlnirile și discuțiile între membrii grupului QuCos din Romania s-au atat realizat in totalitate față în față. Grupul din Romania s-a intalnit fizic pe tot parcursul anului 2022. Întâlnirile periodice cu toti partenerii din consorțiu au fost realizate fizic si online. Toate celelalte activitati de diseminare au avut loc fizic.

- Raportul intermediar de progres a fost transmis echipei de monitorizare QuantERA in 15 mai 2022. Rezultatele obtinute in cadrul proiectului au fost prezentate de catre directorul de proiect, Univ. Prof. Dr. Gerhard Kirchmair la QuantERA Strategic Conference 20-21 September 2022 care a avut loc la ICE Krakow Congress Centre, Polonia <https://quantera.eu/wp-content/uploads/QuCoS.pdf>
- Au avut loc două vizite de lucru ale partenerului din Germania (Dr. Ioan Pop) la INCDTIM între 27-30 iunie și intre 5-9 septembrie 2022. In data de 30 iunie Dr. Pop a sustinut un seminar cu audienta generala in cadrul INCDTIM, intitulat "Operating in a deep underground facility improves the locking of gradiometric fluxonium qubits at the sweet spots" - <https://web.itim-cj.ro/wp-content/uploads/2022/06/Rezumat-30-iunie-Dr-Ioan-Pop.pdf>
- 3rd QuCos Meeting - Întâlnirea dintre reprezentanții consorțiu a avut loc on-site la Institute for Experimental Physics, Technikerstrasse 25, Innsbruck, Austria între 12-14 aprilie 2022. Întâlnirea a fost organizată sub forma unui mini-simpozion, unde fiecare partener a prezentat rezultatele obtinute printr-o prezentare de 30 minute. Din partea ITIM au participat Dr. Luiza Buimaga-Iarinca si Dr. Liviu Zarbo.
- 4th QuCos Meeting a avut loc on-line tot sub forma unui mini-simpozion cu prezentari de 30 minute si discutii, in data de 17.11.2022. La aceasta intalnire au participat toti membrii consorciului, incluzand doctoranzii si postdoctoranzii.
- Computational investigation of Aluminum Oxide formation at Aluminum surface, poster, Luiza Buimaga-Iarinca, Liviu Zarbo, Cristian Morari, AMS 2022 The 9th International Conference on Advanced Materials and Structures, 16th - 18th June 2022 University Politehnica Timișoara Romania

- Granular aluminium as a material for constructing superconducting qubits, comunicare orala, Teodora Murariu, Cristian Morari and Luiza Buimaga-Iarinca, RYA 2022 Conference, Challenges of the 21th Century: Assessments, Approaches, Perspectives, 4-6 november 2022, Moeciu, Romania
- workshop "Dezvoltarea tehnologiilor cuantice prin implementarea proiectului QuCos de tip ERA-NET QuanERA la INCDTIM" sustinut online la Universitatea Tehnica Cluj Napoca la invitatia Centrului pentru Transfer Tehnologic a UTCN
- Development of quantum technologies in Romania. Challenges and perspectives - comunicare orala in cadrul simpozionului Opportunities for Horizon Europe partnerships in Bio-Nano-Science/Technologies organizat de CeSO UBB 2020 la Babeş-Bolyai University, Faculty of Biology and Geology, Zoology Lecture Hall, Cluj-Napoca, Clinicilor Street 5-7 in data de 11 Nov 2022

3.2 Publicatii

- "Gradiometric fluxonium artificial atom made of superconducting granular aluminum", autori Daria Gusenkova, Martin Spiecker, Simon Gunzler, Patrick Paluch, Dennis Rieger, Larisa-Milena Pioras-Timbolmas, Liviu Zarbo, Alexandru Petrescu, Wolfgang Wernsdorfer, Patrick Winkel, and Ioan Pop, Appl. Phys. Lett. 120, 054001 (2022)
- "A roadmap for building quantum key distribution devices" , Teodora Murariu, Andra Pastrav, Carmen Tripon, Cristian Morari, Emanuel Puschita, Liviu Zarbo, IEEE Xplore 2022 – 21ST ROEDUNET CONFERENCE: NETWORKING IN EDUCATION AND RESEARCH - PROCEEDINGS
- "Para-hydrogen crystals reduce quasiparticle losses in IR-sensitive superconducting quantum circuits", autori F. Valenti, A.N. Kanagin, A. Angerer, L. Buimaga-Iarinca, C. Morari, J. Schmiedmayer, I. Pop work in progress in colaborare cu partenerii de la KIT (pentru Phys Rev B)

3.3 Dezvoltare de cod

- În primul an de implementare a proiectului am dezvoltat un cod (RLAT) și o subrutina de analiză Fourier a seriilor de date (FourMD). Codului RLAT i-au fost adăugate funcționalizări semnificative și a devenit RLAT 2.0. În acest an i-au fost adăugate 2 funcționalități, respectiv cea de analiză adâncimii de penetrare a O în bulkul de aluminiu și cea de analiză compozitiei chimice a structurilor.
- A fost construit un cod nou, v-therm pentru calculul parametrilor vibrationali ai sistemelor.

Director de proiect

Cluj-Napoca

Dr. Luiza Buimaga-Iarinca

Referințe

- [1] Thomas P Senftle et. al., The ReaxFF reactive force-field: development, applications and future directions npj Computational Materials **2016** 2, 15011.
- [2] Sungwook Hong, Adri C.T. van Duin, Molecular Dynamics Simulations of the Oxidation of Aluminum Nanoparticles using the ReaxFF Reactive Force Field, J. Phys. Chem. C, 119, 31, 17876–17886 (2015)
- [3] J.D. Gale, JCS Faraday Trans., 93, 629 (1997); J.D. Gale and A.L. Rohl, Mol. Simul., 29, 291-341 (2003)
- [4] <https://plasma-gate.weizmann.ac.il/Grace/>
- [5] <http://www.gnuplot.info/>
- [6] <http://www.xcrysden.org/>
- [7] <https://github.com/arohl/gdis>
- [8] R . Carles, P. Benzo, B. Pécassou, C. Bonafos, Vibrational density of states and thermodynamics at the nanoscale: the 3D-2D transition in gold nanostructures, Scientific Reports volume 6, Article number: 39164 (2016)
- [9] A. A. McQuarrie, Statistical Mechanics, Harper & Row, New York, 1976.
- [10] Lin, S. T.; Maiti, P. K.; Goddard, W. A., Two-Phase Thermodynamic Model for Efficient and Accurate Absolute Entropy of Water from Molecular Dynamics Simulations, J. Phys. Chem. B 2010, 114, 8191–8198.
<https://doi.org/10.1021/jp103120q>
- [11] A. R. Leach, Molecular modelling, Prentice Hall, 2001.

4 Rezumat executiv al activităților realizate în perioada de implementare

Rezultatul final al proiectului “Quantum Computation with Schrödinger cat states” implementat de consorțiul QuCos va fi primul procesor cuantic corectat de erori dezvoltat în Europa. Arhitectura acestui procesor este bazată pe qubiti supraconductori, i.e. jonctiuni Josephson construite din aluminiu granular.

Rolul ITIM în cadrul proiectului este de a propune o teorie-model pentru procesul de formare a aluminiului granular, model ce va fi dezvoltat până la finalul proiectului, în mai 2025.

Problema abordată în cadrul acestui proiect, i.e. propunerea unui model de autoasamblare a aluminiului în aluminiu granular face parte din categoria high risk high gain. Este o problema de ordin fundamental, încă nerezolvată în literatură datorită complexității deosebite pe care o presupun metodele de investigare.

În acest sens, am realizat o serie de studii pentru mai multe modele de formare a oxidului de aluminiu pe suprafete de aluminiu pur în diferite simetrii și configurații de structură. Am evaluat atât geometria legăturilor care se formează în suprafata, cât și chimia sistemelor - distribuția de oxid, suboxid, sau metal din sistem, și parametrii termodinamici ai suprafetei - energia de vibratie, entropia, energia liberă. Prin analiză exhaustivă a sistemelor formate din aluminiu - oxid de aluminiu am explicitat date experimentale cum ar fi formarea jonctiounilor (grosime, geometrie, chimie sau omogeneitatea materialului). Toate aceste informații, completate de studii de structură ce vor avea loc în etapa urmatoare vor constitui bazele teoriei model de formare a granulelor de aluminiu.