液体アルカリ金属の動的構造

広大総合科　星野公三、下條冬樹、渡部三雄

§１．はじめに

最近、強力線源を用いる実験技術の進歩を背景として、液体アルカリ金属の動的構造が中性子非弾性散乱実験により活発に研究されつつある。[1-3] 特に、静的構造と同様に広い温度、密度、圧力領域での実験が可能になり、新たな興味ある結果が得られている。[1] これらの実験に刺激されて、理論的ならびにシミュレーションによる研究も盛んに行われている。[4-8]

本研究の目的は、実験で得られている液体Rbの動的構造の温度変化を理論的に再現するとともに、その特徴的性質が他の液体アルカリ金属にも共通して見られるかどうかについて調べることである。

§２．理論的方法

まず、液体の構造を理論的に研究するために基本的な有効イオン間相互作用ポテンシャル$\phi(r)$は、アルカリ金属のような単純液体金属の場合には、擬ポテンシャル摂動理論により求めることができる。

イオン間相互作用ポテンシャルが与えられたとき液体の構造を求めることは、液体の統計力学（液体論）の主要な課題のひとつであり、最近、積分方程式理論の発展が著しい。[9] ここでは、積分方程式理論の中で最も精度の高い近似理論のひとつであるmodified hypernetted-chain(MHNC)近似を用いて動径分布関数$g(r)$や構造因子$S(k)$を求める。

液体アルカリ金属の動的構造の温度・密度依存性を系統的に調べるため、動的構造因子$S(k,\omega)$の計算には簡単な近似理論である粘弾性理論[10] を用いる。粘弾性理論では、有効イオン間相互作用ポテンシャル$\phi(r)$とMHNC近似で計算した構造因子$S(k)$を用いて、動的構造因子$S(k,\omega)$が次式で与えられる。

$$S(k,\omega)=\frac{1}{\pi}\frac{\tau(k)\omega_0^2(k)[\omega_1^2(k)-\omega_0^2(k)/S(k)]}{[\omega\tau(k)(\omega^2-\omega_1^2(k))]^2+[\omega^2-\omega_0^2(k)/S(k)]^2}.$$

ここで、$\omega_0(k)$、$\omega_1(k)$はそれぞれ$S(k,\omega)$のωに関する２次、４次のモーメントに関係した量であり、この近似理論では4次のモーメントまで正しい。また、$\tau(k)$は緩和時間であり、ここではLoveseyの近似式[10] を用いる。粘弾性理論では、中間散乱関数$F(k,t)$の２階の記憶関数$N(k,t)$を指数関数で近似しているので、シミュレーションと比較してみると定量的には多少差が見られるが、$S(k,\omega)$のkおよびω依存

性を半定量的に記述できると言える。

更に、励起モードの分散関係$\omega_m(k)$を粘弾性理論で計算したS(k, ω)にもとづいて、密度流の縦成分の相関関数$J_l(k, \omega)=(\omega^2/k^2)S(k, \omega)$の最大値から求める。

§3. 計算結果

図1に粘弾性理論により計算された液体RbのS(k, ω)を4つの代表的な波数について示す。S(k)の第1ピークに相当する波数($k=1.46\text{Å}^{-1}$)の場合にはde Gennes ナローイングがみられ、それ以外の波数ではサイドピークが存在する。また、実験的に得られているS(k, ω)[1] と比較すると理論の結果ではサイドピークが強調される傾向があるが、実験結果の特徴的性質を半定量的に良く再現している。

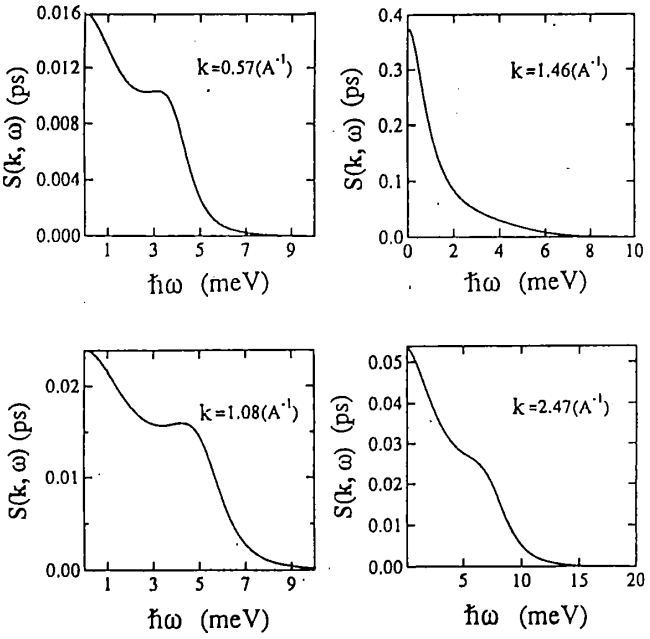

図1　液体Rbの動的構造因子S(k, ω)(T=900K)

図2に、液体Na, K, RbおよびCsに対する分散関係$\omega_m(k)$の温度依存性を示す。図から、次のような液体アルカリ金属に共通した分散関係の温度依存性の特徴的性質があることがわかる。（1）分散曲線は波数の関数として、まず、フォノン的なモードがあり、ピークをもった後、S(k)の第1ピークに相当する波数付近で極小値をとり、さらに波数とともに増加する。（2）温度の上昇にともなって、分散曲線はピークより小さな波数の領域ではわずかに減少するが、ピークより大きな波数の領域ではかなり増加する。（3）分散曲線の極小値付近での温度依存性は定性的にはS(k)の第1ピーク付近の温度依存性で説明できる。（4）極小値よりも大きな波数領域での分散曲線

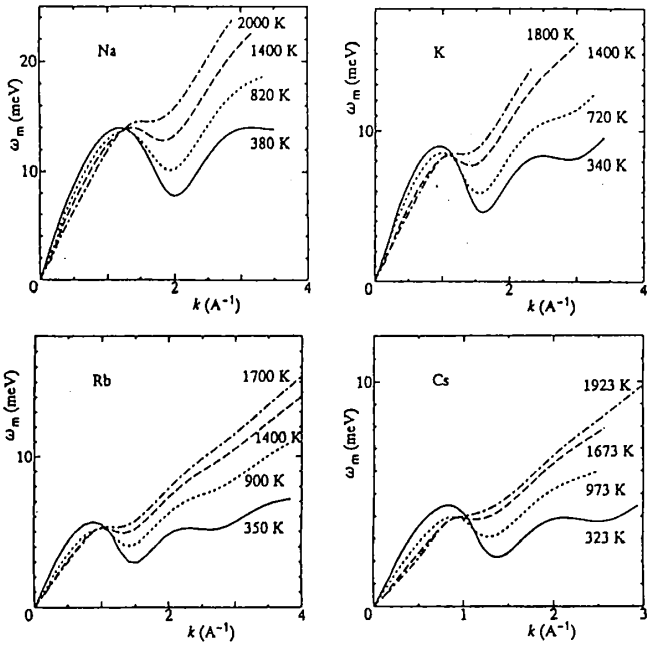

図2　液体アルカリ金属の分散関係の温度変化

の温度依存性は熱速度の温度依存性（温度の平方根に比例）により説明できる。現在のところ、実験的に分散曲線の温度依存性が調べられているのは液体Rbのみであるが、図２に示したRbの理論的結果はPilgrimらの実験結果[1)]をよく再現している。[4)] 最近、同様の計算が液体Liに対しても行われており、構造因子、分散関係ともに他の液体アルカリ金属と類似した結果が得られている。[8)]

§４．おわりに

ここでは、蒸気圧曲線に沿った広い密度領域における液体アルカリ金属の動的構造に関する最近の我々の理論的研究の結果[11)]を中心に述べ、液体アルカリ金属の動的構造の温度依存性に共通の特徴的性質があることを理論的に示した。現在のところ、動的構造の温度依存性に関する実験データが得られているのは液体Rbのみであり、今後の系統的な実験的研究が望まれる。液体の静的・動的構造の理論における最近の進歩は、信頼性の高い積分方程式理論（MHNC近似）の確立、モード結合理論の発展[12)]および高精度のシミュレーションの適用によってもたらされた。液体アルカリ金属のように有効イオン間相互作用ポテンシャルが比較的精度良く求められる場合には、液体金属の静的・動的構造をかなり正確に求める理論的手法が確立したと言える。

［参考文献］

1)C.Pilgrim, R.Winter, F.Hensel, C.Morkel and W.Glaser:Ber.Bunsenges. Phys.Chem. **95** (1991)1133; W-C.Pilgrim, R.Winter and F.Hensel:J.Phys.: Condens.Matter **5** (1993) B183.

2)T.Bodensteiner, C.Morkel, W.Glaser and B.Dorner:Phys.Rev. A**45** (1992) 5709.

3)P.H.K.de Jong, P.Verkerk and L.A.de Graaf:J.Non-Cryst.Solids **156-158** (1993)48.

4)K.Hoshino, H.Ugawa and M.Watabe:J.Phys.Soc.Jpn. **61** (1992)2182.

5)S.Kambayashi and G.Kahl:Phys.Rev. A**46** (1992)3255.

6)U.Balucani, A.Torcini and R.Vallauri:Phys.Rev. B**47** (1993)3011.

7)F.Shimojo, K.Hoshino and M.Watabe:J.Phys.Soc.Jpn. **63** (1994)in press.

8)D.J.Gonzalez, L.E.Gonzalez and K.Hoshino:submitted to J.Phys.Cond.Matter

9)積分方程式理論の解説として、星野公三、渡部三雄:固体物理 **27** (1992)95.

10)液体論の教科書として、J.P.Hansen and I.R.McDonald:"Theory of Simple Liquids",Academic Press,1986.

11)K.Hoshino,F.Shimojo and M.Watabe:submitted to J.Phys.Soc.Jpn.

12)本研究会における下條らの報告を参照していただきたい。