

液体の Pair Interaction Potential 2

— 液体金属, 液体半金属の Pair Interaction Potential —

関東学院大・工学部 福田 興 作

(7月18日受理)

1. Introduction

M.D.Johnson 等¹⁾ は液体金属として Li, Na, K, Rb, Cs, Hg, Al および Pb の8種類を選び, それぞれの金属の温度2点について, Born-Green 方程式, 及び Percus-Yevick 方程式をつかって, radial distribution function より potential を求めている。

その結果は液体金属では, conduction electron がイオンを不完全に screening することから, atom またはイオン間の pair interaction potential は, Lennard-Jones 型よりはむしろ振動型になることを示し, long range な force interaction の場合も, x-ray diffraction や, neutron diffraction data から atom またはイオン間の pair interaction potential を, 平均的な意味で導入出来ることを示している。また彼等は液体 Ar についても調べ, この場合 Born-Green 方程式の方が, Percus-Yevick 方程式によるより近似がよいことも示している。

液体 Ar と液体金属の radial distribution function の実験 data の形はあまり異なっていないので, 結果的に同じ方法での計算が, 液体 Ar では Lennard-Jones 型になり, 液体金属では振動型になることは, 計算のため initial input として導いた平均力の potential に相当する function からくるものではないということも彼等の結論である。

著者等は前回 Born-Green 方程式をつかって液体 Ar の radial distribution function の data から pair interaction potential を求めるための数値解の性質について吟味した。²⁾ここではその方法に従って液体金属および液体半金属の radial distribution function の data を吟味しながら, それ等の data から pair interaction potential を計算し

福 田 興 作

た結果を示してみたい。

前回に示したごとく計算は Born-Green 方程式に従いくり返し計算の方法による。

2. Pair Interaction Potential

ここで選んだ液体金属および液体半金属は Na, K, Hg, In, Pb, Bi および Sn の 7 種で第 1 表に選んだ 2 点の温度とともに示してある。

第 1 表

Substances		Temperature (°C)	a_0 (Å)	References Number
金 属	Na	100	2.93	3
		400	2.36	4
	K	70	3.60	4
		395	3.51	4
	Hg	23	2.57	5
		150	2.32	6
	In	160	2.40	7
		390	2.40	7
半 金 属	Pb	350	2.73	8
		550	2.73	8
	Bi	300	2.78	8
		550	2.68	8
	Sn	250	2.52	7
		390	2.44	7

われわれはこれ等液体金属および液体半金属の radial distribution function の data より出発して、〔1〕 3 式で pair interaction potential を計算する。前回と同様発散を防ぐ因子を〔1〕 9 式に従って導入し、くり返し計算で結果を求める。計算には国際キリスト教大学の IBM-1130 電子計算機を用い数値積分は IBM-Subroutine QSFをつかった。これは Simpson 法と Newton $\frac{3}{8}$ 法を結合したものである。

液体金属、液体半金属各々の物質の potential の initial input function としては、R.H.Wentorf Jr. 等の用いた Lennard-Jones

type の potential [1] 5 式に, potential の第 1 近似が

$$\psi(r) = - \frac{\log g(r)}{P} \quad (1)$$

$$P = \beta \epsilon_0$$

となることから, 各物質の radial distribution function の maximum value を $g(r)_m$ としたとき $kT \log g(r)_m$ をとり, 液体 Ar のそれとの比を乗じたものをとっている。従って結果の pair interaction potential は液体 Ar の potential の reduced value $\epsilon_0 = 1.649 \times 10^{-14}$ erg. で reduce したものが示してある。さらに initial input function の温度 T としては一つの物質については温度 2 点の平均値をとった。

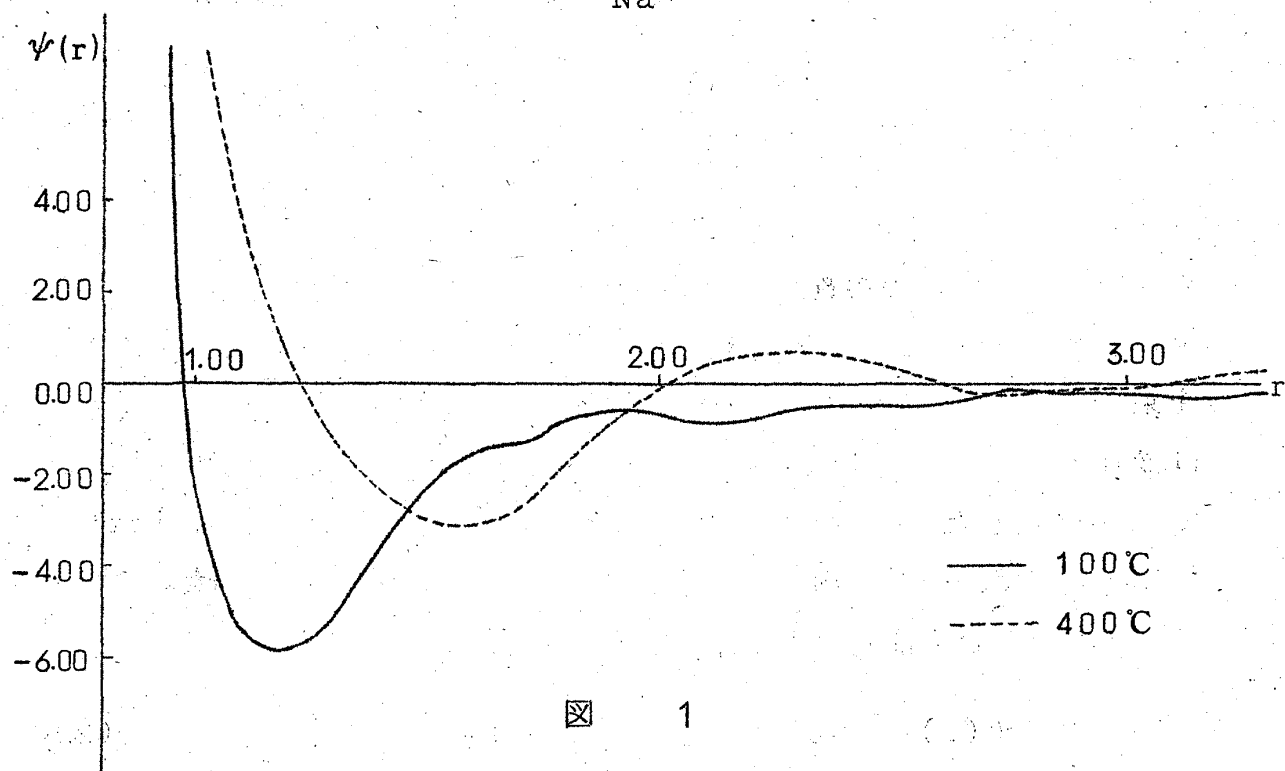
いずれの場合も前回の液体 Ar の計算と同様に

$$\psi(r) = 0 \quad r \geq 3.45 \quad (2)$$

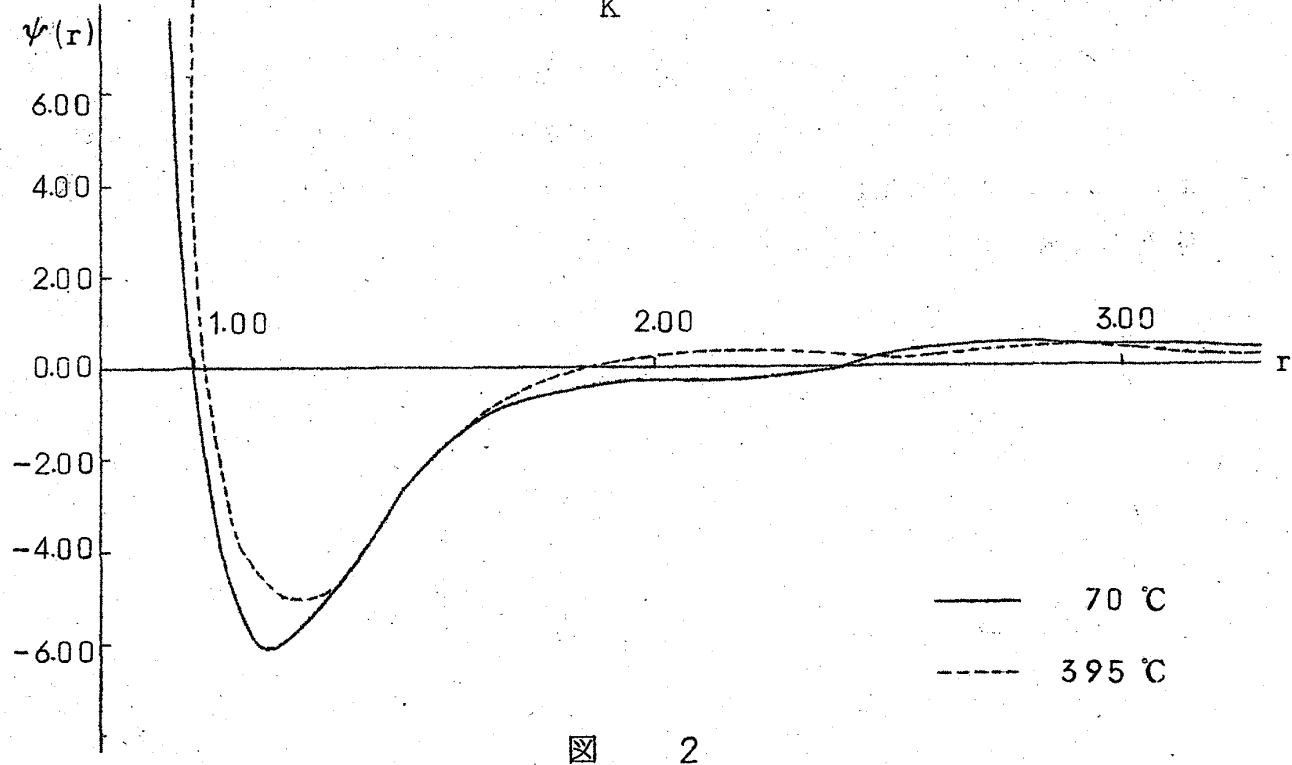
を仮定し, この仮定より来る積分の補正項は, 今回は液体 Ar の data よりみて小さいと考え省略した。すなわち $CcF = 1$ と置いた。くり返し計算は 10 回で打切っている。

図 1 より図 7 までに液体金属, 液体半金属の pair interaction potential のその結果を示し, 比較のため液体 Ar の同じ initial input function より出発した pair interaction potential を図 8 に示した。各々の物質の a_0 の値は第 1 表に示してある。

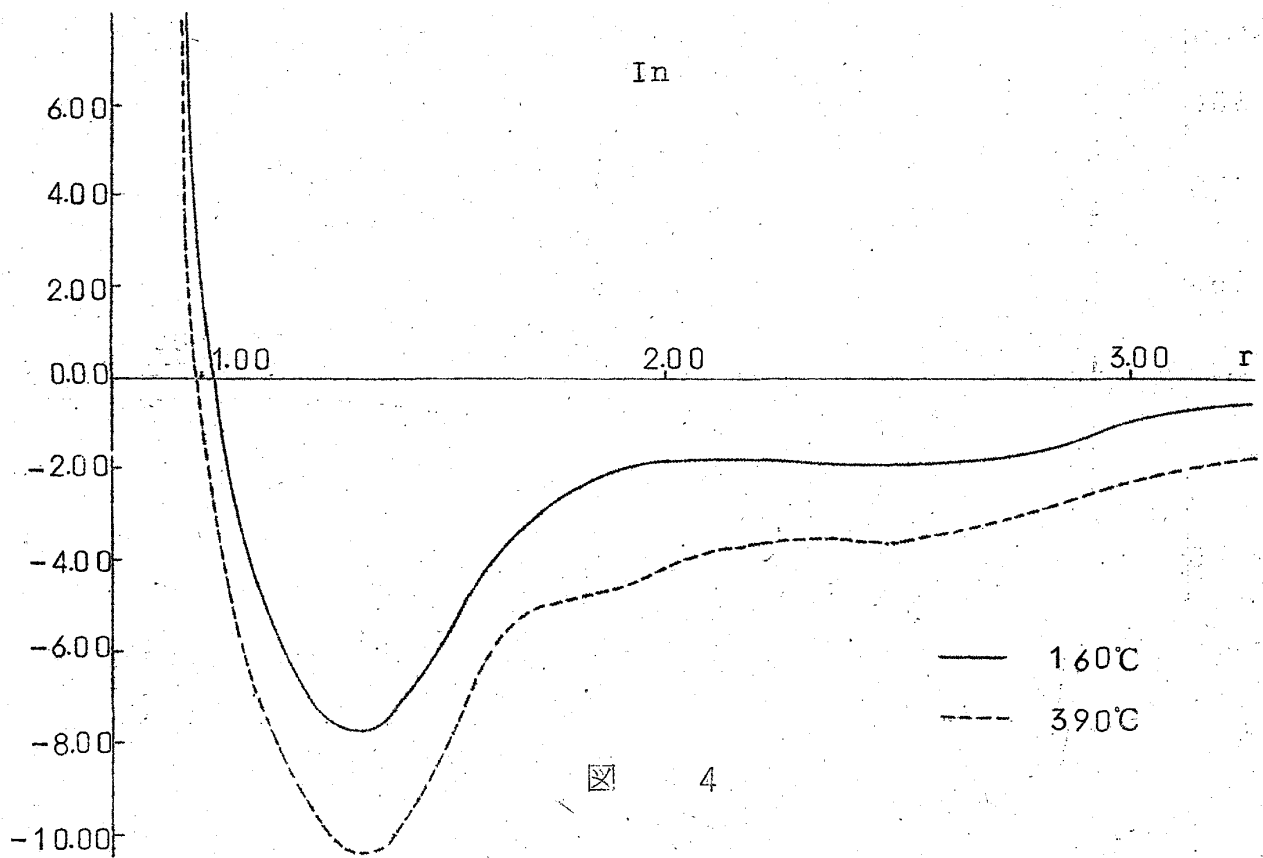
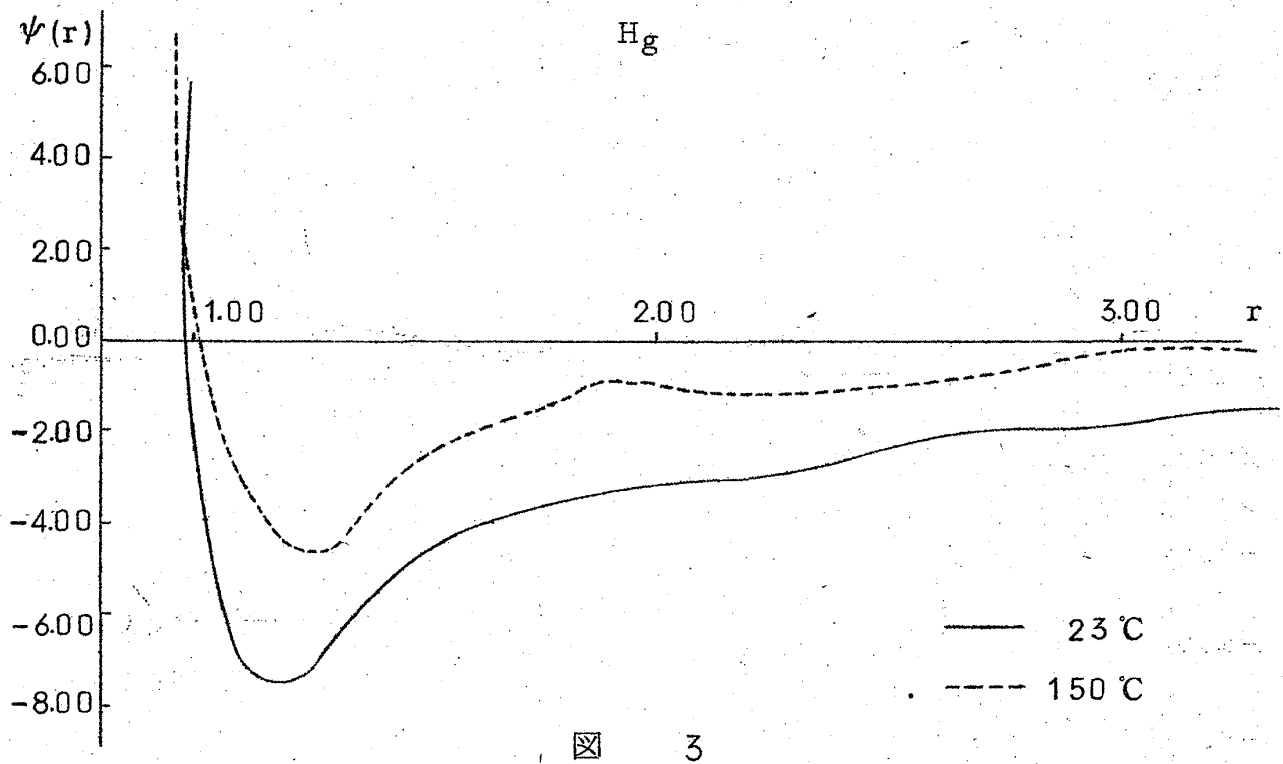
Na

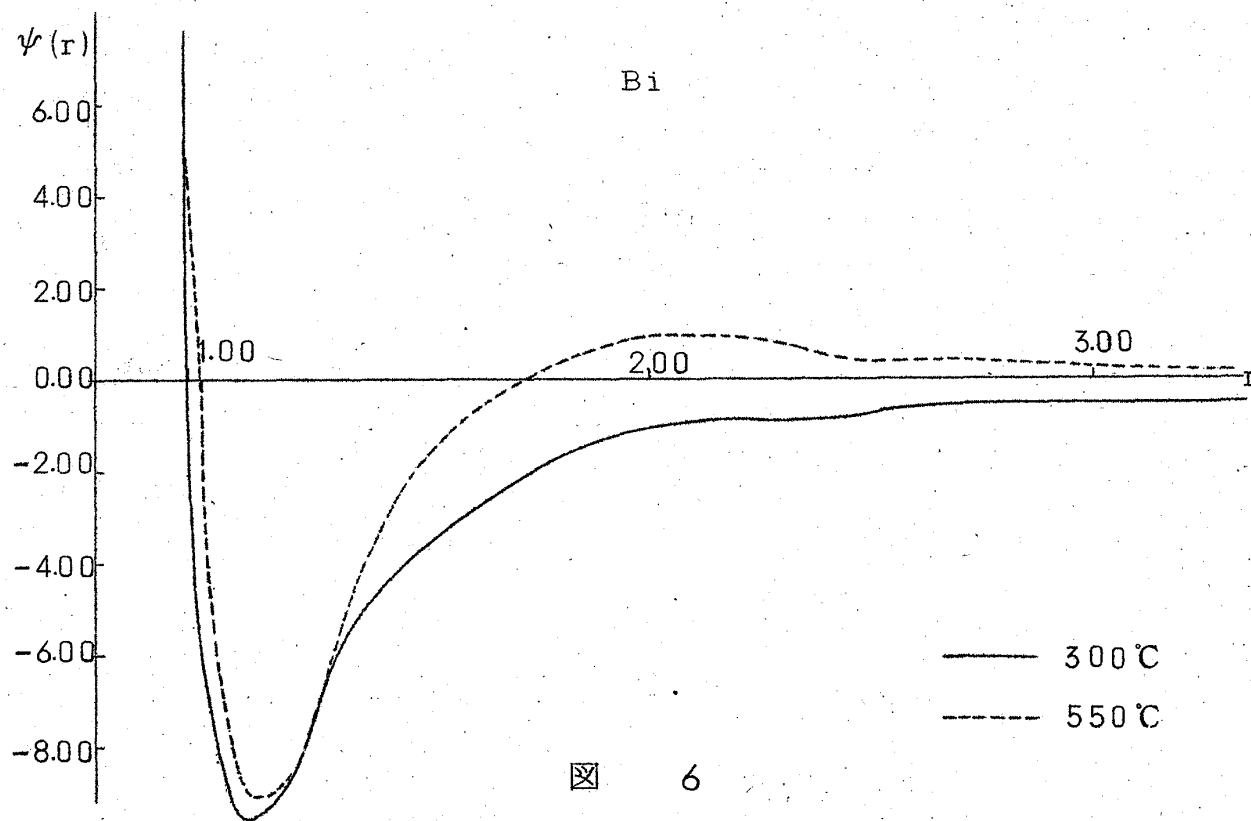
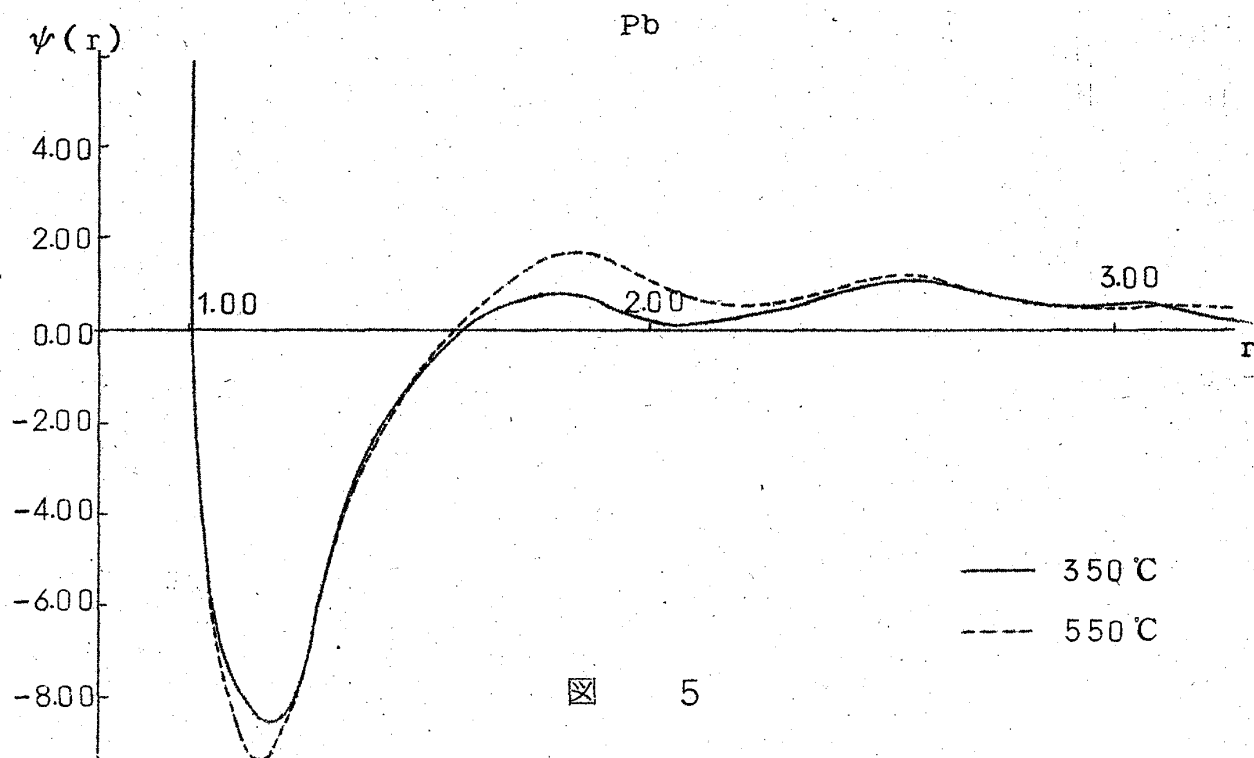


K

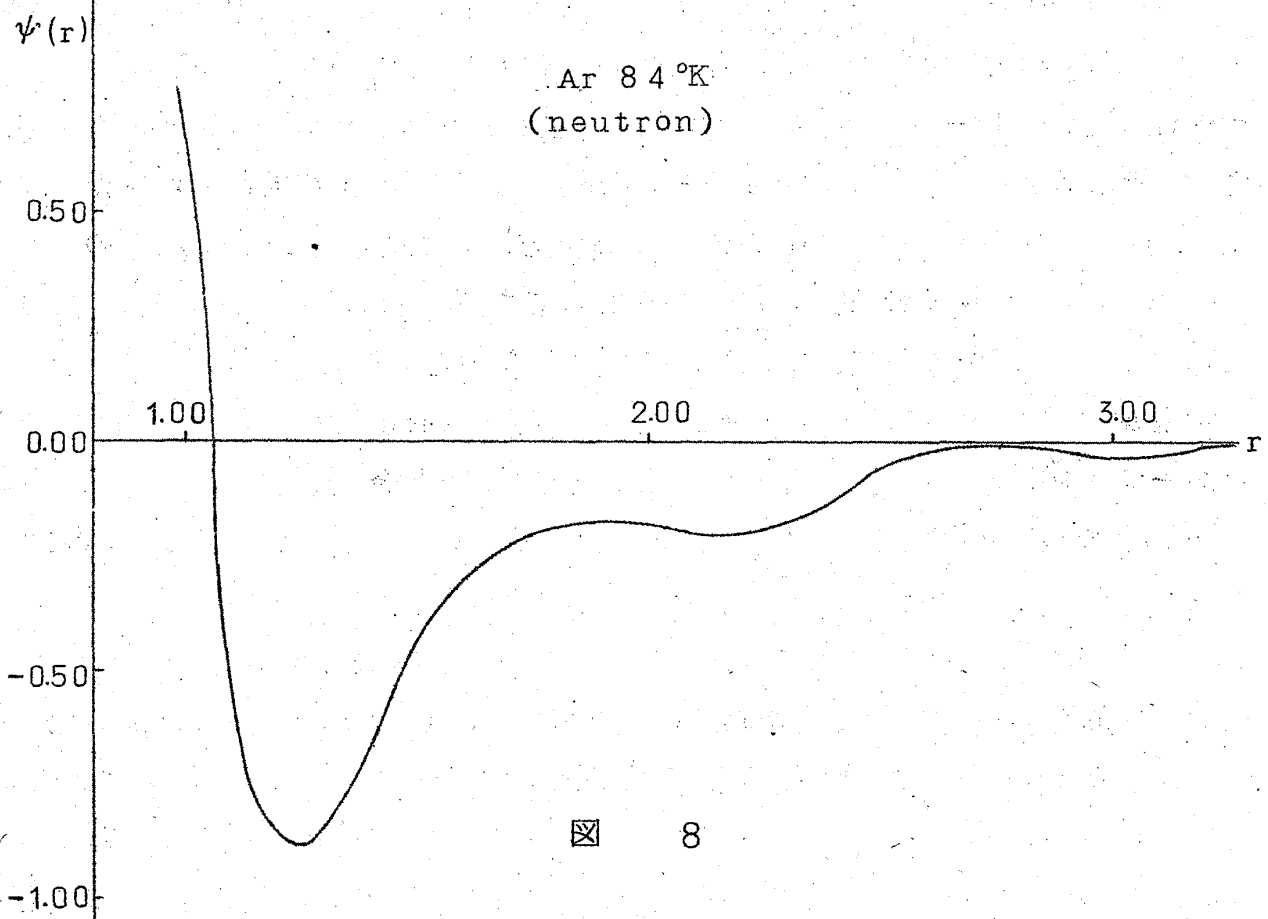
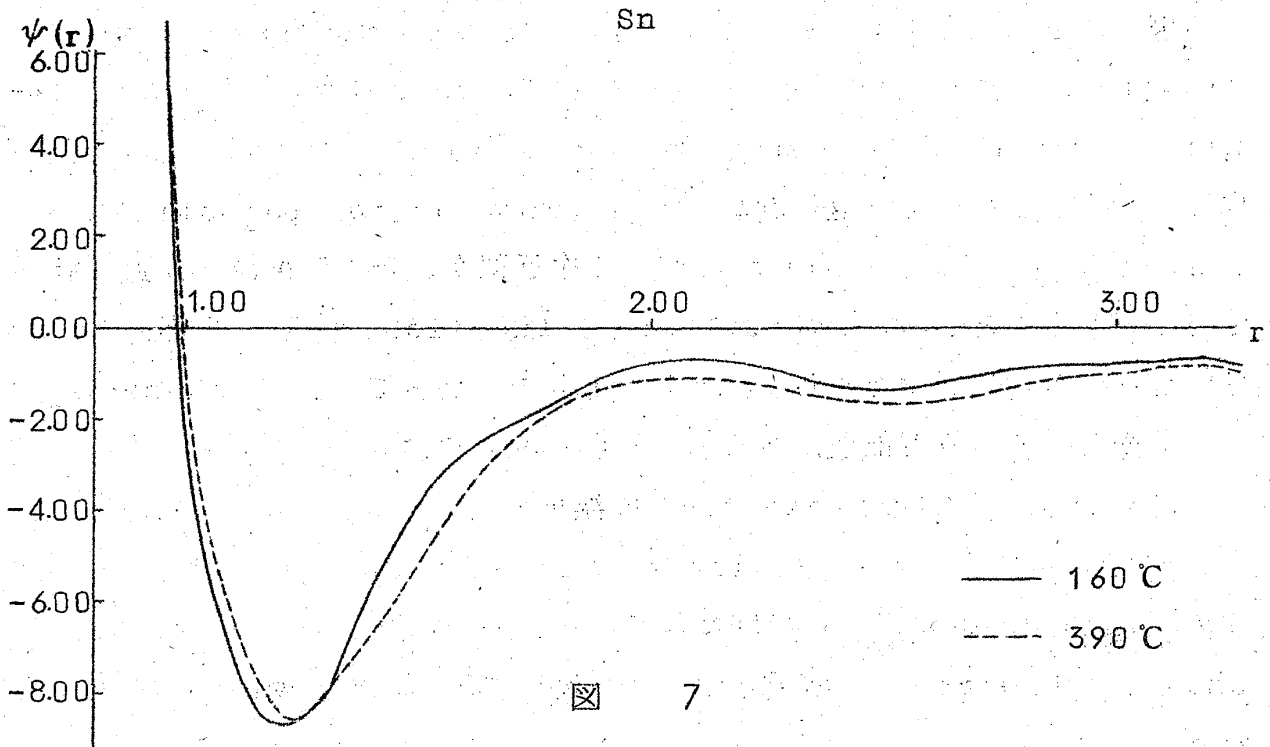


液体の Pair Interaction Potential 2





液体の Pair Interaction Potential 2



3. Discussion

結果は液体金属および液体半金属の atom またはイオンが conduction electron の不完全な screening によって, pair interaction potential が振動型になるよりはむしろ Lennard-Jones 型で, これが変形する程度である。しかしくり返し計算で pair interaction potential の initial input function すなわち 0 次近似が, 意外に後のくり返し計算まで影響することから, initial input function として何を選ぶかに影響されると考える。すなわち 0 次近似のとり方によって M. D. Johnson 等のように振動型になる可能性がある。この点に関してはさらに検討中である。

Pair interaction potential の温度変化は Na, K, Hg, Bi および Sn では温度の高い方が pair interaction potential の first peak は浅くなり, In および Pb では反対である。Pb に関しては P. C. Gehlen and J. E. Enderby⁹⁾ の結果と傾向は一致して居り, この場合も振動型ではない。

Initial input function として, 一つの物質の 2 つの温度の平均を取ったのは (1) 式より出発して, 各物質の $kT \log g(r)_m$ をとり, 液体 Ar のそれとの比は, 同一物質について $g(r)$ の温度変化は小さいので, 温度に比例する。それゆえこの比を Lennard-Jones potential に乗じて作った initial input function は温度が高い方が必然的に potential の first peak が深くなることがおこるからである。計算の結果は温度による変化は Na, Hg および In をのぞいてあまりないと考えてよいと思う。

半金属 Bi については W. Klemm und H. Niermann¹⁰⁾ が示すように, 融点の一つの転移点で, この転移点でゆるく充填した非金属的構造が closed packed な金属的構造に変ることが示されており, このことは電気伝導度にも示され, われわれは金属と同様に取扱って来た。

Sn については固体状態において, すでにダイヤモンド構造をした灰色 Sn が, 金属的な白色 Sn に転移が起り, 液体の Sn では原子の配列状態は白色 Sn に似ているとされている。そして電気伝導度には温度による変化はあまり現れず, 研究者によって温度とともに増加するとも減少するとも云われている。ここでは Sn を金属と同様に取扱ったが, くわしいことは今後の研究に待つと

ところが多いと思われる。

われわれは Born-Green 方程式による数値解析を行ったが、他の方法によるものも計算する予定である。

参 考 文 献

- 1) M.D.Johnson, P.Hutchinson and N.H.March ; Proc. Roy. Soc. 282A 283 (1964)
- 2) 福田興作 ; 物性研究 14, 51 (1970) これを論文〔1〕と書く。
- 3) N.S.Gingrich and L.Heaton ; J.Chem. Phys. 34, 873 (1961)
- 4) N.S.Gingrich ; Rev. Mod. Phys. 15, 90 (1943)
- 5) G.H.Vineyard ; J.Chem. Phys. 22, 1665 (1954)
- 6) J.A.Campbell and J.H.Hildebrand ; J.Chem. Phys. 11, 330 (1943)
- 7) C.Gamertsfelder ; J.Chem. Phys. 9, 450 (1941)
- 8) P.C.Sharrah ; J.Chem. Phys. 21, 228 (1953)
- 9) P.C.Gehlen and J.E.Enderby ; J.Chem. Phys. 51, 547 (1969)
- 10) W.Klemm und Niermann ; Angew. Chem. 75, 508 (1963)