

時間に依存するニュートン-アンダーソン模型を用いて脱離原子のイオン化確率を計算する。その際に平衡状態ですでに得られている厳密解を用い、時間に依存する部分は現象論的な取り扱いをする。軌道近似を用いたニュートン-アンダーソン模型に関する物理的な意味および参考文献はこの一ヶ月前の吉森氏の報告を見ていただくことにして、まず、ハミルトニアンを書き下す。

$$H = \sum_{k,\sigma} \epsilon_k n_{k\sigma} + \sum_{\sigma} \epsilon_a(t) n_{a\sigma} + \sum_{k,\sigma} [V_k(t) C_{k\sigma}^{\dagger} C_{a\sigma} + \text{H.C.}] + U(t) n_{a\uparrow} n_{a\downarrow} \quad (1)$$

なお記号は普通に用いられているものである。 $t < 0$ のときは原子は表面に吸着していると考え、その場合は ϵ_a , V_k , U は t に依存しない。 $t = 0$ で脱離がおこるとするとそれ以後の時間ではこれらのパラメータは時間に依存する。しかしながらここでは話を簡単にするために以下 ϵ_a , U の時間依存性は無視することにする。さらにもし表面から脱離する原子の表面に垂直な脱離速度 v が非常に大きいとすると話はさらに簡単になる。

例えば、 V_k の時間依存性として $t < 0$ では $V_k(t) = V_k$, $t > 0$ では $V_k(t) = V_k \exp(-avt)$ と仮定すると v が非常に大きいと $V_k(t) \approx V_k \theta(-t)$ と階段関数を用いて書ける。故にこの極限では $t < 0$ の時の平衡状態でハミルトニアン H の解を用いてイオン化確率の計算できる。一方時間に依存しないハミルトニアンは伝導電子バンドの状態密度が一定(バンド巾が大きい)で、 V_k が波数 k に依存しない (V_k を V と書く) という仮定の下で厳密に解けている。絶対零度におけるハミルトニアン (1) の時間に依存しない解は次の連立積分方程式で書ける。¹⁾

$$\sigma_a(\Lambda) - \int_{-\infty}^Q R(\Lambda - \Lambda') \sigma_a(\Lambda') d\Lambda' = \frac{1}{4\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \text{sech} \pi(\Lambda - x^2) \frac{dx/\sqrt{u}}{(x + \sqrt{u}/2)^2 + 1/4u} \quad (2)$$

$$\sigma_c(\Lambda) - \int_{-\infty}^Q R(\Lambda - \Lambda') \sigma_c(\Lambda') d\Lambda' = \frac{1}{4\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \text{sech} \pi(\Lambda - x^2) dx \quad (3)$$

ここで $R(x)$ はフーリエ空間内で $[1 + \exp(i\omega)]^{-1}$ になる関数で $u = U/2\Delta$, $E_a = \epsilon_a/2\Delta$, $\Delta = \pi \rho V^2$, ρ は伝導電子の状態密度である。さらに Q は次式より定まる。

$$\int_{-\infty}^Q \sigma_c(\Lambda) d\Lambda = (u/2 + E_a)/\pi\sqrt{u} \quad (4)$$

なお E_a はフェルミ面より測る。吸着原子の占有電子数 $n_a = \langle n_{a\uparrow} + n_{a\downarrow} \rangle$ と結合エネルギー E は ϵ_a から計算できる。すなわち

$$n_a = 1 - \sqrt{u} \int_{-\infty}^0 \sigma_a(\Lambda) d\Lambda, \quad (5)$$

$$(E-E_s)/2\Delta = (u/2+E_a)n_a + 2u \int_{-\infty}^0 d\Lambda \sigma_a(\Lambda) \int_0^{\infty} dx x^2 \operatorname{sech} \pi(\Lambda-x^2), \quad (6)$$

ここで E_s は

$$(E_s-E_s(u=0))/2\Delta = \frac{1}{\pi} \operatorname{Re}(1+iu) \log(1+iu) - \int_0^{\infty} \frac{\sqrt{x}}{\pi} dx \int_0^{\infty} \frac{\operatorname{cosech} \pi(x+y^2) dy}{(y+\sqrt{u}/2)^2 + 1/4u}$$

と書け、ハミルトニアンが対称 ($U=-2G_a$) の場合の結合エネルギーである。(2)~(6)式を用いることにより、イオン化確率は次の様に計算できる。すなわち負イオンの確率は $P_- = 2E_a/4u$ 、中性原子の確率は $P = n_a - 2P_-$ 、正イオンの確率は $P_+ = 1 - P_- - P$ である。数値計算の結果を図1に示した。なお G_a はフェルミ面から割っていき G_a の変化は仕事関数の変化とも考えられる。脱離原子の速さ v が非常に大きい場合は有限温度²⁾ でもイオン化確率の計算は正確にできる。その結果を図2に示した。

次に原子の脱離速度 v が任意の大きさの場合について考える。この場合には $\Delta (= \pi \rho V(t))$ の時間依存による遅延効果を考えねばならない。ハミルトニアンにクーロン相互作用の項 U を含んだときには取り扱いがむずかしいので遅延効果は現象論的に取り入れることにする。まず表面からの距離 $z (= vt)$ にある原子を考え、その場合のハミルトニアン H の静的な解とそれに対応した静的なイオン化確率 $P_{\pm}(z)$ は厳密に計算できると注目する。そして時間間隔 $0 < t_1 < \infty$ を $t_0=0$, $t_1=t_0+dt_1$, $t_2=t_1+dt_2, \dots$ と分割していく。すると例えば $t_1=dt_1$ のイオン化確率は静的なものを α を用いて近似的に次の様に書けるだろう。

$$[1-2\Delta(vt_1)dt_1]P_{\pm}(z=0)+2\Delta(vt_1)dt_1P_{\pm}(z=vt_1) \quad (7)$$

この様に考えると我々の求めたい $t \rightarrow \infty$ でのイオン化確率 $\tilde{P}_{\pm}$ は次の様に計算できる。

$$\begin{aligned} \tilde{P}_{\pm} &= P_{\pm}(0) \prod_{m=1}^{\infty} (1-2\Delta_m dt_m) + \int_{t=1}^{\infty} P_{\pm}(vt_{\ell}) 2\Delta_{\ell} dt_{\ell} \prod_{m=\ell+1}^{\infty} (1-2\Delta_m dt_m) \\ &= P_{\pm}(0) \exp[-2 \int_0^{\infty} \Delta(z) \frac{dz}{V}] + \int_0^{\infty} 2\Delta(z) P_{\pm}(z) \frac{dz}{V} \exp[-2 \int_z^{\infty} \Delta(z') \frac{dz'}{V}], \quad (8) \end{aligned}$$

すなわち(8)式は厳密に計算できる $P(z)$ を用いて $\tilde{P}_{\pm}$ を書き表わしている式となる。次にこの表式がどの程度よいのかを調べることとする。まず当然のことであるが $P_+(z)+P_-(z)+P(z)=1$ である限り $\tilde{P}_++\tilde{P}_-+\tilde{P}=1$ は満たしている。次に $\Delta(z)=\Delta_0 \exp(-\alpha z)$ と(7)式をより見やすい形に書き直すと

$$\tilde{P}_{\pm} = P_{\pm}(\Delta=\Delta_0) \exp\left(-\frac{2\Delta_0}{va}\right) + \int_0^{\Delta_0} P_{\pm}(\Delta(z)) \exp\left(-\frac{2\Delta}{va}\right) \frac{2d\Delta}{va} . \quad (9)$$

となる。まず v が大きいときは (9) 式は

$$\tilde{P}_{\pm} = P_{\pm}(\Delta=\Delta_0) - \frac{2\Delta_0}{va} [P_{\pm}(\Delta_0) - \frac{1}{\Delta_0} \int_0^{\Delta_0} P_{\pm}(\Delta) d\Delta] . \quad (10)$$

となり、第一項はすでに求めた結果と一致し、それに対する補正を与える第二項も $1/v$ に比例し、かつ v が小さいときは (9) 式は

$$\tilde{P}_{\pm} = P_{\pm}(\Delta=0) + (ab_1/2)v , \quad (11)$$

となり補正項を表わす第二項は以前に計算された³⁾ $\exp(-c/v)$ の型にばらず v に比例するようになる結果になった。これは多分ここで取り扱ってはいない v が小さい場合に遅延効果を取り入れすぎているからであると思われる。数値計算の結果を図3に示した。

ハートリー・フォック近似を用い原子内クーロン相互作用を考慮に入れた研究もなされているが⁴⁾ ここでは原子内クーロン相互作用の相関効果に重点を置き脱離原子のイオン化確率を計算してみた。原子の脱離速度 v が非常に大きいときにはここで用いた方法でも U の効果も含めてほぼ正確にイオン化確率を計算することができるが v の小さいときは遅延効果を取り入れすぎた結果になった。 U を考慮に入れたこのハミルトニアンでのより良い遅延効果の取り入れ方法を考えたいと思っている。

参考文献

- 1) P.B. Wiegmann, Phys. Lett. 80A (1980) 163.
N. Kawakami and A. Okiji, Phys. Lett. 86A (1981) 483
- 2) A. Okiji and N. Kawakami, J. Appl. Phys. 55 (1984) 1931
- 3) R. Brako and D.M. Newns, Surface Sci. 108 (1981) 253
- 4) A. Yoshimori, K. Makoshi and H. Kawai, Proc. VII Taniguchi Symposium (1984)
(Springer Verlag) 69, および本研究会報告(吉森等)

*) この結果はオク回谷ロシンボジウムで発表した。

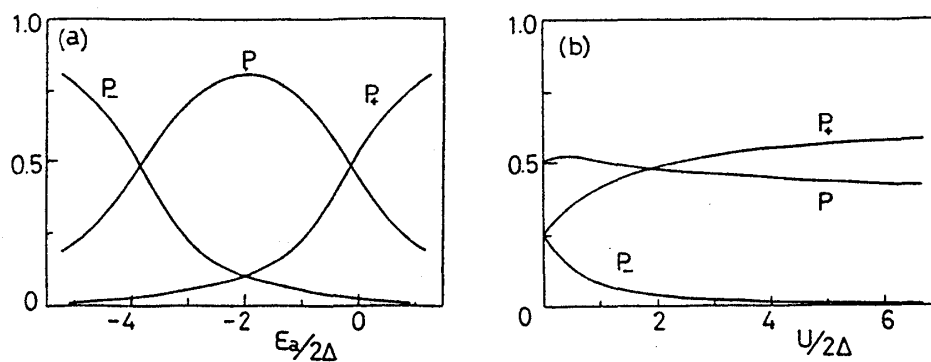


図1 絶対零度でのイオン化確率 (a) $U/2\Delta = 4$ (b) $E_a = 0$

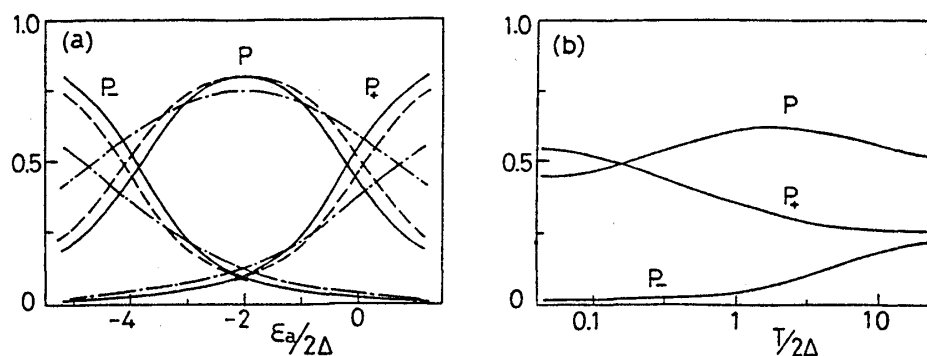


図2 有限温度でのイオン化確率 (a) $U/2\Delta = 4$, $T/2\Delta = 0$ —, 0.32 ---, 1.0 - - -, (b) $E_a = 0$, $U/2\Delta = 4$

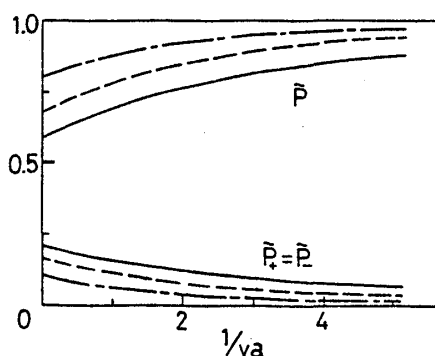


図3 9式で与えられるイオン化確率
($E_a = -\frac{U}{2}$)
 $U = 1.0$ —, 2.0 ---, 4.0 - - - ($\Delta_0 = 0.5$)