

有限系における平滑化された電子状態密度および格子振動数スペクトル

埼玉工大 田村 明

1. 研究の目的

ミクロなクラスターでは固有状態は離散的エネルギーをもつが、マクロなバルク系においては連続値となる。このようなサイズによる状態変化がメゾスコピック系にいかに関与されるのかを、平滑化された電子状態密度(DOS)ならびに格子振動数スペクトル(FS)に着目して明らかにする。

2. Balian & Blochの理論

過去、平滑化されたDOSはBalian & Bloch¹によりGreen関数とGaussian smoothingを用いて、解析的に導出されている。結果は体積項、表面項、円周項の和で表現されている。本研究では、固有値の分布から直接、DOSならびにFSを求めることを目的とする。

3. 球内電子のDOS

3-1. 固定端境界条件

半径 R で無限大の井戸型ポテンシャルをもつ球状有限系の電子の固有関数は球Bessel関数 $j_l(r)$ で表現され、固有エネルギーは $E_{nl} = [\hbar^2/(2mR^2)]\eta_{nl}^2$ で表わされる。換算固有値 η_{nl} の分布を図1に示す。 η_{nl} は $\eta_{nl} = \alpha l + \beta n$ と近似する。これは l (角運動量)を連続変数、 n (分枝番号)を離散変数と考えることに相当する。

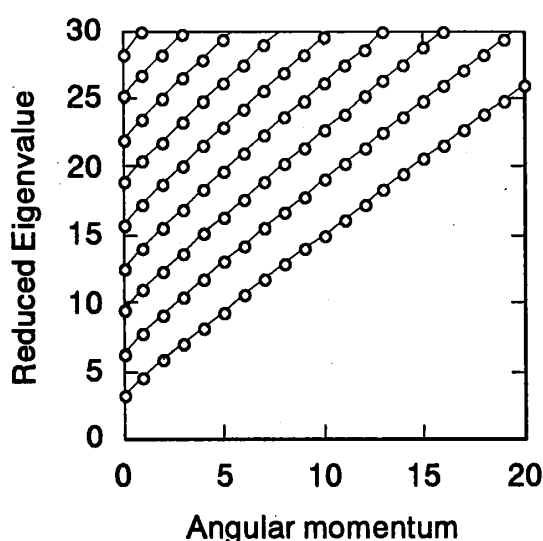


図1. 固定端境界条件のもとでの固有値の分布。

平滑化されたDOSは、球対称性からくる自由度 $(2l+1)$ とスピン自由度2を考慮して

$$D(E)\delta E = 2 \sum_n (2l+1) \delta l \quad (1)$$

で表わされる。 n についての総和は $\eta + \frac{\alpha}{2} - \beta N = 0$ を満たす N までとする。このようにして平滑化されたDOSは $\delta E = (\hbar^2/mR^2)\eta\delta\eta$ を用いて、以下のように求められる。

$$\begin{aligned} \bar{D}_{\text{fix}}^{(3)}(E) &= \frac{4mR^2}{\hbar^2\alpha^2} \frac{1}{\eta} \sum_n [(\eta + \frac{\alpha}{2}) - \beta n] \\ &= \frac{3}{4\pi\alpha^2\beta} (2m/\hbar^2)^{3/2} \{V\sqrt{E} + \frac{1}{3}S\sqrt{\frac{\hbar^2}{2m}}(\alpha - \beta) + \frac{1}{6}L(\frac{\hbar^2}{2m})\alpha(\alpha - \beta)\frac{1}{\sqrt{E}}\}. \end{aligned}$$

ここに、第1項はバルク項（体積 V ）、第2項は表面項（表面積 S ）、第3項は円周項（円周の長さ L ）を表わす。半径 R が無限大のときはバルクのDOS

$$\bar{D}_{\text{bulk}}^{(3)}(E) = \frac{V}{2\pi^2} (2m/\hbar^2)^{3/2} \sqrt{E}.$$

になるはずであるから、2変数 α, β は $\alpha^2\beta = 3\pi/2$ を満足する。図2にBalian & Bloch¹理論の結果も同時に示す。本研究の結果の方がより平均的なDOSを与えている。

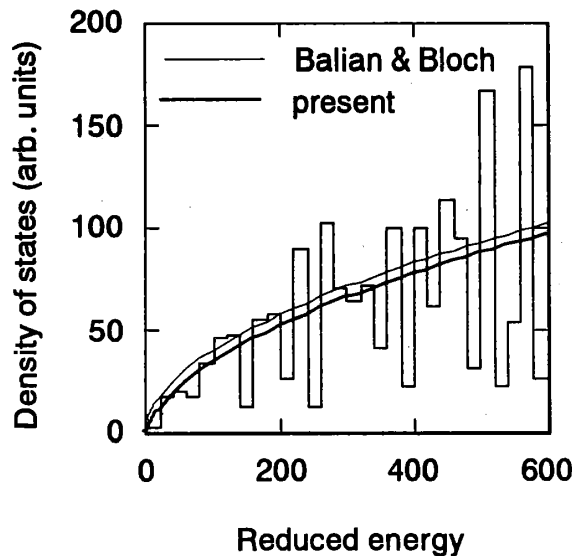


図2. 電子状態密度。棒グラフは図1の離散分布から、換算エネルギー幅20ごとに含まれる状態数を順次求めたもの。細線はBalian & Bloch¹のもの。太線は本研究結果。

3-2. 自由端境界条件

波動関数に対する境界条件を表面のところで $j'(\eta) = 0$ とすると、換算固有値の分布は $\eta_{nl} = \alpha l + \beta n + \gamma$ と近似できる。これは、図1の分布をシフトしたものとなっている。固

定端境界条件の場合と同様にして、平滑化されたDOSは(1)式より以下のようになり

$$\bar{D}_{\text{free}}^{(3)}(E) = \frac{3}{4\pi\alpha^2\beta} (2m/\hbar^2)^{3/2} \left\{ V\sqrt{E} + \frac{1}{3}S\sqrt{\frac{\hbar^2}{2m}}(\alpha - \beta - 2\gamma) \right. \\ \left. + \frac{1}{6}U\left(\frac{\hbar^2}{2m}\right)(\alpha - 2\gamma)(\alpha - 2\beta - 2\gamma)\frac{1}{\sqrt{E}} \right\}.$$

バルク項、表面項、円周項の和で表現される。円周項はBalian & Bloch¹理論では $E=0$ で発散するが、本結果では係数が負なので発散しない。これは彼等の理論が高エネルギーでの展開に基づいており、低エネルギー領域は適用範囲からはずれることによる。

4. 2次元電子系

円板の場合、平滑化されたDOSは角運動量の z -成分に関する縮退度から

$$\bar{D}^{(2)}(E)\delta E = 4 \sum_{l=1} \delta n + 2\delta n$$

で定義される。右辺第2項は $l=0$ のときの縮退を表わす。半径 R の円周上で波動関数がゼロとなる固定端の境界条件では、換算固有値は $\eta_{nl} = \alpha l + \beta n + \gamma$ と近似され、

$$\bar{D}_{\text{fix}}^{(2)}(E) = \frac{4m}{\pi\hbar^2\alpha\beta} \left\{ S + \frac{L}{4}(\hbar^2/2m)^{1/2}(\alpha - 2\beta - 2\gamma)\frac{1}{\sqrt{E}} \right\}.$$

となる。ここに第1項は2次元バルクのDOS $D_{\text{bulk}}^{(2)}(E) = mS/(\pi\hbar^2)$ 、第2項は1次元バルクのDOSに対応する。

5. 1次元電子系

長さ L の1次元の場合、固定端境界条件で固有エネルギーは $E_n = (\pi^2\hbar^2/2mL^2)n^2$ とな

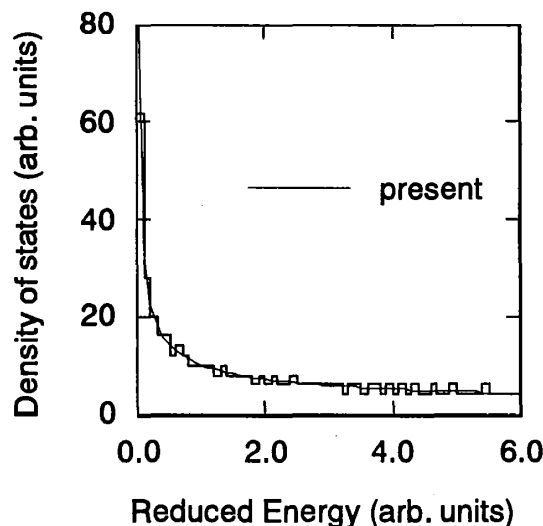


図3. 1次元電子系の状態密度。本結果は棒グラフの凹凸部の中央を通っている。

り、状態変数は n しかないためDOSは

$$\bar{D}^{(1)}(E) \delta E = 2 \delta n = \frac{L}{\pi} \sqrt{2m/\hbar^2} \frac{1}{\sqrt{E}} \delta n.$$

で与えられる。この結果は1次元無限系のDOSと全く同じものである。

6. 固体クラスターの平滑化された振動数スペクトル

球状固体クラスターの格子振動を連続体モデルに基づいて導出する。弾性体モデルでは、表面でストレスが存在しないという境界条件のもとで、Spheroidal mode（縦変位と横変位の混成）、ならびにTorsional mode（横変位）が存在する。^{2,3} 平滑化されたFSは

$$F_{\text{sol}}(\omega) \delta \omega = \sum_{\sigma} \sum_n (2l+1) \delta l$$

で与えられる。ここに、 σ は2つの固有モードを表わす。サイズの増加にともなって ω^2 に比例してゆく傾向が見られる。（詳細は参考文献2,4を参照されたい。）

7. 液滴クラスターの平滑化された振動数スペクトル

液体状態にあるクラスターの固有振動状態は原子核の動的構造の解析に用いられてきた液滴モデルを適用する。^{5,6} 液滴の振動モードの固有振動数は基準となる球の半径を R 、質量密度を ρ 、表面張力を γ_s とし、変形された表面で圧力変化と密度変化が平衡状態にあるとして、つぎの固有値方程式から得られる。

$$\frac{1}{j_l(\eta)} \frac{d}{d\eta} j_l(\eta) = \frac{C}{(l-1)(l+2)\eta}$$

ここに $C = \rho R u^2 / \gamma_s$ 、振動数は $\omega_{nl} = u \eta_{nl} / R$ である。換算固有値の最も下の分枝（図4）が表面変形振動に対応する。固体状態の分散関係と異なり下に凸となっている。平滑化されたFSは

$$F_{\text{liq}}(\omega) \delta \omega = \sum_n (2l+1) \delta l$$

で定義される。角運動量 l に対して表面変形振動モードを $\eta = a l^2 + b l + c$ と近似し、平滑化されたFSを求めると、図5のようになる。低振動数領域のピークが表面変形振動に由来するもので、角運動量 l に関して高次曲線の分散関係をもつ振動モードに対しても本理論が適用できることを示している。高振動数領域は圧縮波的な内部振動モードからの寄与を表わす。なおガリウムの微小液滴の格子振動数スペクトルについては、多孔質ガラス中の液滴に対して中性子非弾性散乱の実験がなされており⁷、液滴模型に基づく実験結果の解釈が文献6でなされている。

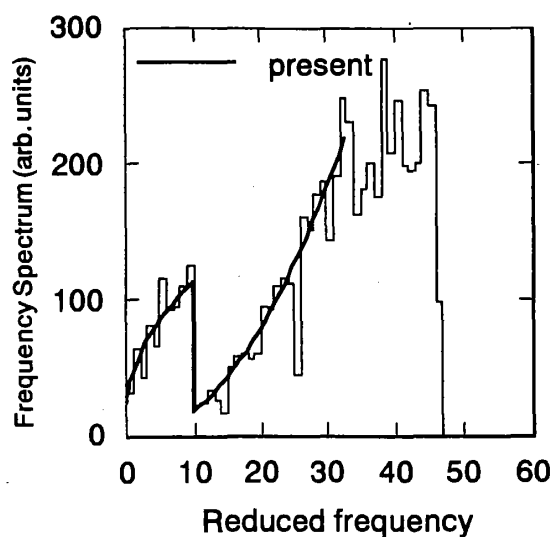
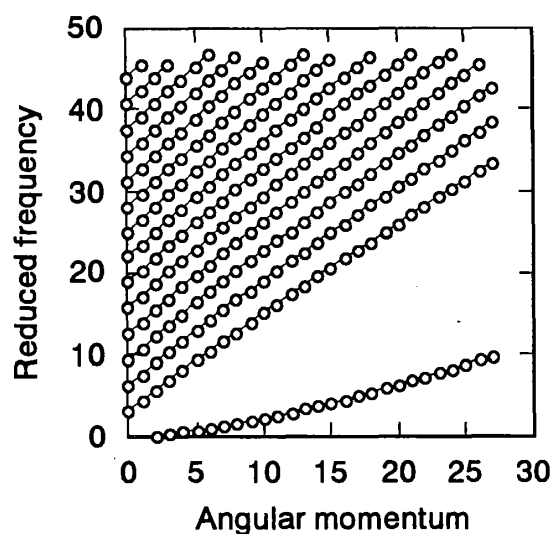


図4. 液滴モデルに基づく固有振動数の分布。 図5. 直径60Åのガリウム液滴に対する
白丸が固有振動数を表わす。 平滑化されたFS。

8. 離散分布から連続分布への変化

バルクに近づくにつれ、有限系の電子状態密度ならびに格子振動数スペクトルが離散的分布から連続的分布に変化する状況は分枝番号 n を離散変数にとどめたことから説明できる。図6に電子状態密度の場合、図7に格子振動数スペクトルの場合を模式的に示す。

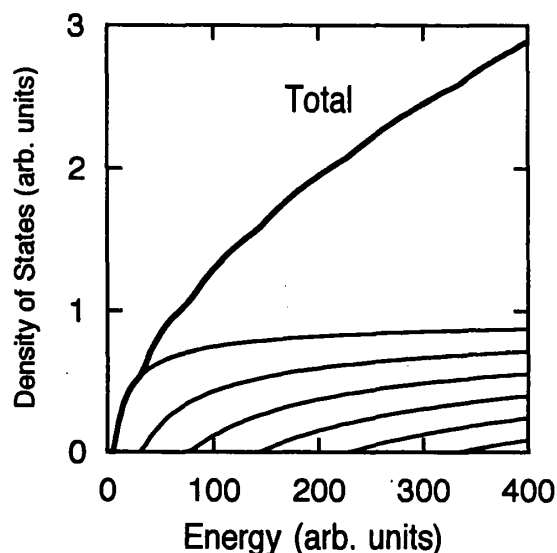


図6. 電子状態密度の各分枝からの寄与と総和。

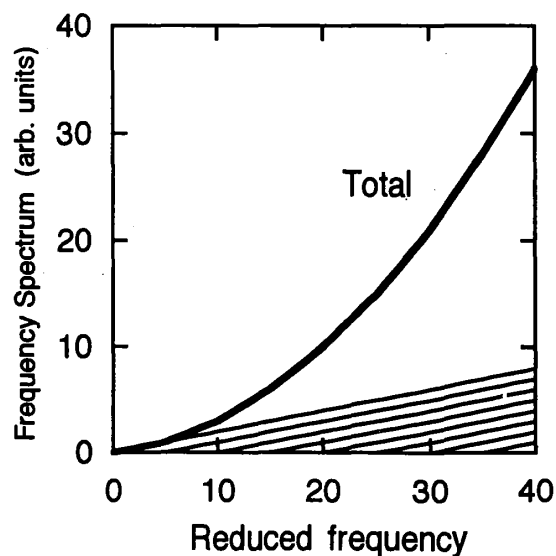


図7. 格子振動数スペクトルの各分枝からの寄与と総和。

平滑化されたDOSにおいては分数関数 $[\eta + (\alpha/2) - \beta n]/\eta$ が各分枝からの寄与を示している。図6の太線は総和を示しており、分枝が新しく加わった点で微係数が不連続となっている。サイズの増加にともない連続的となり $\sqrt{E}$ に比例しバルクのDOSとなる。図7のFSの場合、各分枝からの寄与は直線群 $[\eta + (\alpha/2) - \beta n]$ となり、それらの総和は2次曲線を形成する。新しい直線が付加される点において微係数は不連続となるが、サイズの増加にともなって連続的な ω^2 依存性が得られる。これは、バルクの格子振動数スペクトルに対応する。

9. 結論

メゾスコピック系の場合、離散的な状態変数の一部を連続変数に置き換えることで状態のサイズ依存性を明らかにできることを、電子状態密度ならび格子振動数スペクトルについて示した。これは、微小系では状態変数を離散値、バルク系においては連続値として固有状態を記述することから、メゾスコピック系が微小系とバルク系の中間に位置することを反映している。またサイズの増加にともなって電子状態密度が $\sqrt{E}$ 、格子振動数スペクトルにおいては ω^2 に徐々に近づく状況を明らかにした。

参考文献

- 1 R.Balian and C.Bloch, Ann. Phys. (N.Y.) **60**, 401 (1970).
- 2 A.Tamura, K.Higeta and T.Ichinokawa, J. Phys. C **16**, 4975 (1982).
- 3 A.Tamura, K.Higeta and T.Ichinokawa, J. Phys. C **16**, 4779 (1983).
- 4 A.Tamura, Phys. Rev. **B52**, 2668 (1995).
- 5 A.Bohr and B.R.Mottelson, *Nuclear Structure* (Benjamin, MA, 1975), vol.II, p.658.
- 6 A.Tamura and T.Ichinokawa, Surf. Science **136**, 437 (1984).
- 7 V.N.Bogomolov, N.A.Klusin, N.M.Okuneva, E.L.Plachenova, V.I.Pogrebnoi and F.A.Chudonovskii, Sov. Phys. -Solid State, **13**, 1256 (1971).

(*) 本研究の詳細は文献4を参照されたい。