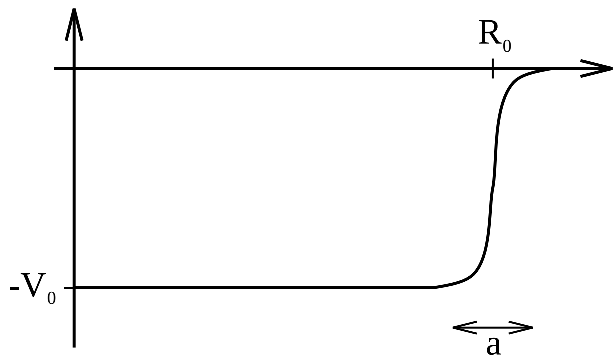
Kapitel 6

Leptoderme Entwicklung

Wie wir in Abschnitt 3.2 gesehen haben, zeichnen sich Cluster-Potentiale dadurch aus, daß ihre Ausdehnung mit der Cluster-Größe wächst, während ihre Form an der Oberfläche praktisch größenunabhängig ist. Die Potentiale sind also durch zwei unabhängige Längenskalen charakterisiert: den Wigner-Seitz Radius r_s, der vermöge $R_0 = r_s\, N^{1/3}$ das Volumen des Clusters beschreibt, und die typische Breite des Potential-Randes a.



Ein gutes Beispiel für derartige Cluster-Potentiale sind die Woods-Saxon Potentiale [8, 56]

$$V(r) = \frac{-V_0}{1 + e^{\frac{r-R_0}{a}}}$$

Mit $R_0 = r_s\, N^{1/3}$ erfüllen sie das Stetigkeits-Kriterium aus Abschnitt 4.1, eignen sich also für eine Bestimmung von $\tilde{E}(N)$ aus Einteilchen-Rechnungen.

Um einen Eindruck davon zu erhalten, wie sich die Verhältnisse bei Variation des Randparameters ändern, betrachten wir die Abhängigkeit der Energieniveaus von a. Dazu wählen wir ein Woods-Saxon Potential mit $R_0 = 50\, a_0$ und $V_0 = 0.45\, Ry$. Für $a = 1.0\, a_0$ entspricht das in etwa dem Potential eines Clusters aus 2000 Natrium-Atomen.

Um den relevanten Bereich zu finden, über den der Randparameter a für verschiedene Materialien variiert, rechnen wir die (durch numerischen Fit an die selbstkonsistenten Potentiale bestimmten) Randparameter auf die Verhältnisse bei Natrium um:

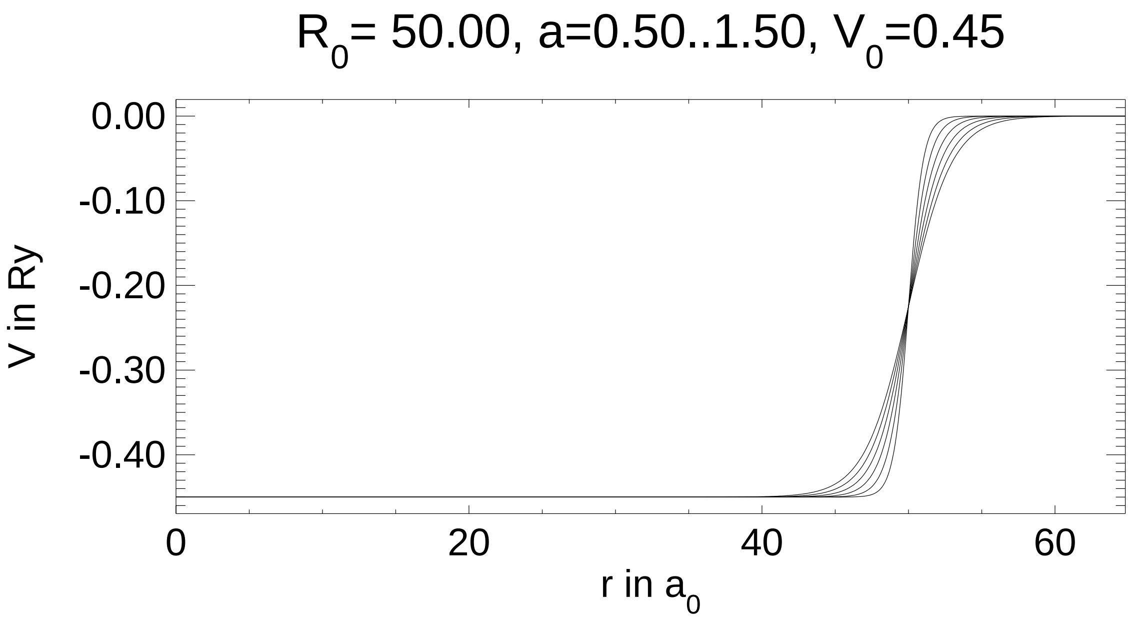
$$a \to a\,\frac{r_s^{\mathrm{Na}}}{r_s^{\mathrm{Material}}}$$

Dabei finden wir, daß für die von uns betrachteten Metalle (vgl. Tabelle 3.1) der umgerechnete Randparameter im Bereich von etwa $a \to 0.55\,a_0$ für Cäsium bis ungefähr $a \to 1.65\,a_0$ für Aluminium liegt. Die Potentiale sowie die Abhängigkeit der Eigenwerte $\varepsilon_{n,l}$ von a sind in Abbildung 6.1 gezeigt. Es fällt auf, daß die Verschiebung der Energieniveaus von der Größenordnung der Niveau-Abstände ist. Aufgrund des hohen Zentrifugalpotentials reagieren die $\varepsilon_{n,l}$ mit großem Drehimpuls l besonders empfindlich auf Änderungen der Potentialform am Cluster-Rand. Nun hatten wir aber im ersten Kapitel gesehen, daß die Oszillationen in der Gesamtenergie von der Anordnung der Energieniveaus zu nahe benachbarten Gruppen (den Schalen) herrühren. $\tilde{E}(N)$ ist also durch die Struktur des Spektrums auf Energieskalen *unterhalb* des mittleren Niveauabstandes bestimmt. Aufgrund der drastischen Verschiebungen der Energieniveaus bei Änderung des Randparameters a ist man daher zunächst geneigt anzunehmen, daß sich auch der oszillierende Anteil der Gesamtenergie bei Variation von a stark ändern wird. Wie Abbildung 6.2 zeigt, ist das jedoch keineswegs der Fall. Die $\tilde{E}(N)$-Kurven unterscheiden sich für verschiedene a praktisch nur in der Lage der Superknoten. Tatsächlich hat die Analyse in Abschnitt 3.1 gezeigt, daß die Oszillationen in der Gesamtenergie im wesentlichen durch die fast-Entartung der Niveaus mit $n = 0, 1$ oder 2 und mit großem Drehimpuls hervorgerufen werden. Und wie man in Abb. 6.1 sieht, werden diese Niveaus zwar stark verschoben, aber diese Verschiebungen sind so ähnlich, daß sich die *Energiedifferenzen* zwischen den Niveaus nur wenig ändern.

Um die Änderungen in $\tilde{E}(N)$ als Funktion des Randparameters a zu verstehen, empfiehlt es sich daher nicht, die Energieniveaus selbst zu betrachten. Statt dessen versuchen wir, die Abhängigkeit des oszillierenden Anteils der Gesamtenergie von der Form der Potential-Randes mittels unseres semiklassischen Ausdrucks (4.48)

$$\tilde{E} \approx \sqrt{\bar{k}_F R_0}\,\bar{k}_F^2 \sum_{(\lambda,\nu)} \frac{4\alpha_{(\lambda,\nu)}}{\hat{S}^2_{(\lambda,\nu)}} \cos\left(\hat{S}_{(\lambda,\nu)}\,\bar{k}_F R_0 - \varphi_{(\lambda,\nu)}\right)$$

zu verstehen. Dazu müssen wir, wie wir in Abschnitt 4.3 gezeigt haben, im wesentlichen



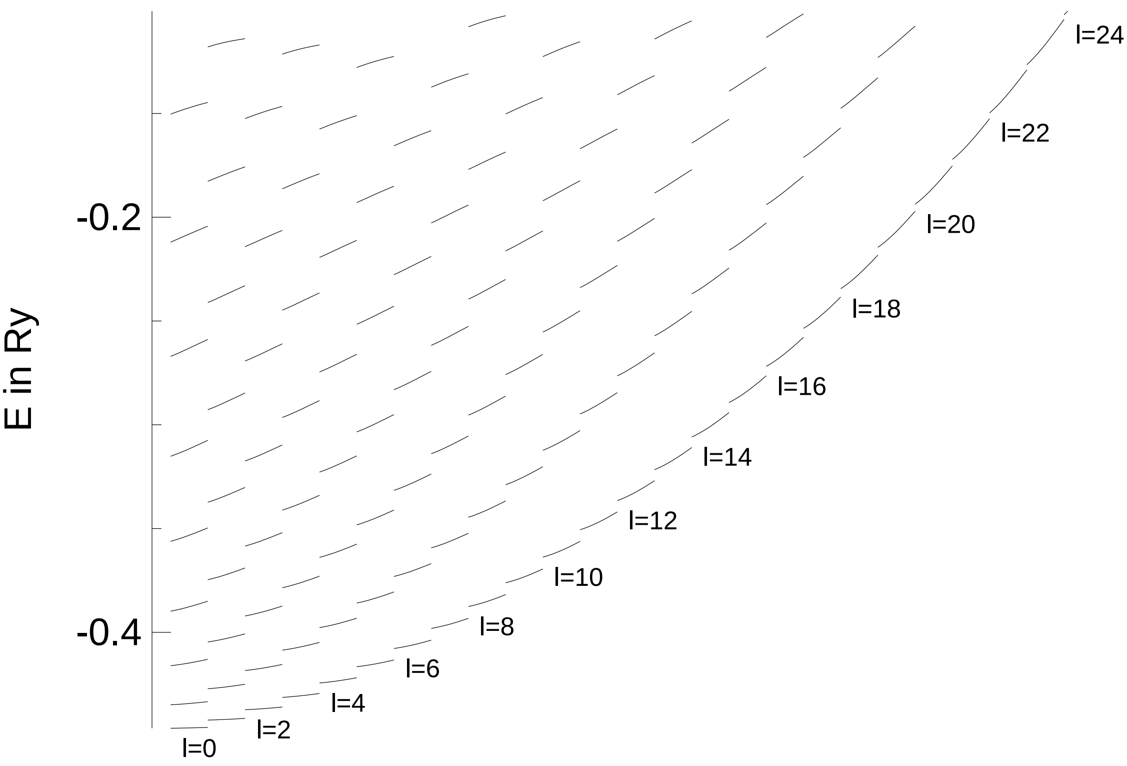


Abbildung 6.1: Verschiebung der Energieniveaus $\varepsilon_{n,l}$ für Woods-Saxon Potentiale $V(r) = -V_0/\Big(1+\exp(\frac{r-R_0}{a})\Big)$ mit verschiedenen Randparametern a. Die Abhängigkeit der $\varepsilon_{n,l}$ von a für die oben angegebenen Potentiale ist im unteren Bild dargestellt. Für gegebenes l sind die Energieniveaus mit wachsendem n übereinander angeordnet. Jede eingezeichnete Linie gibt dabei die a-Abhängigkeit des entsprechenden Energieniveaus wieder: ganz links mit $\varepsilon_{n,l}(a = 0.5\,a_0)$ beginnend bis $\varepsilon_{n,l}(a = 1.5\,a_0)$ ganz rechts.

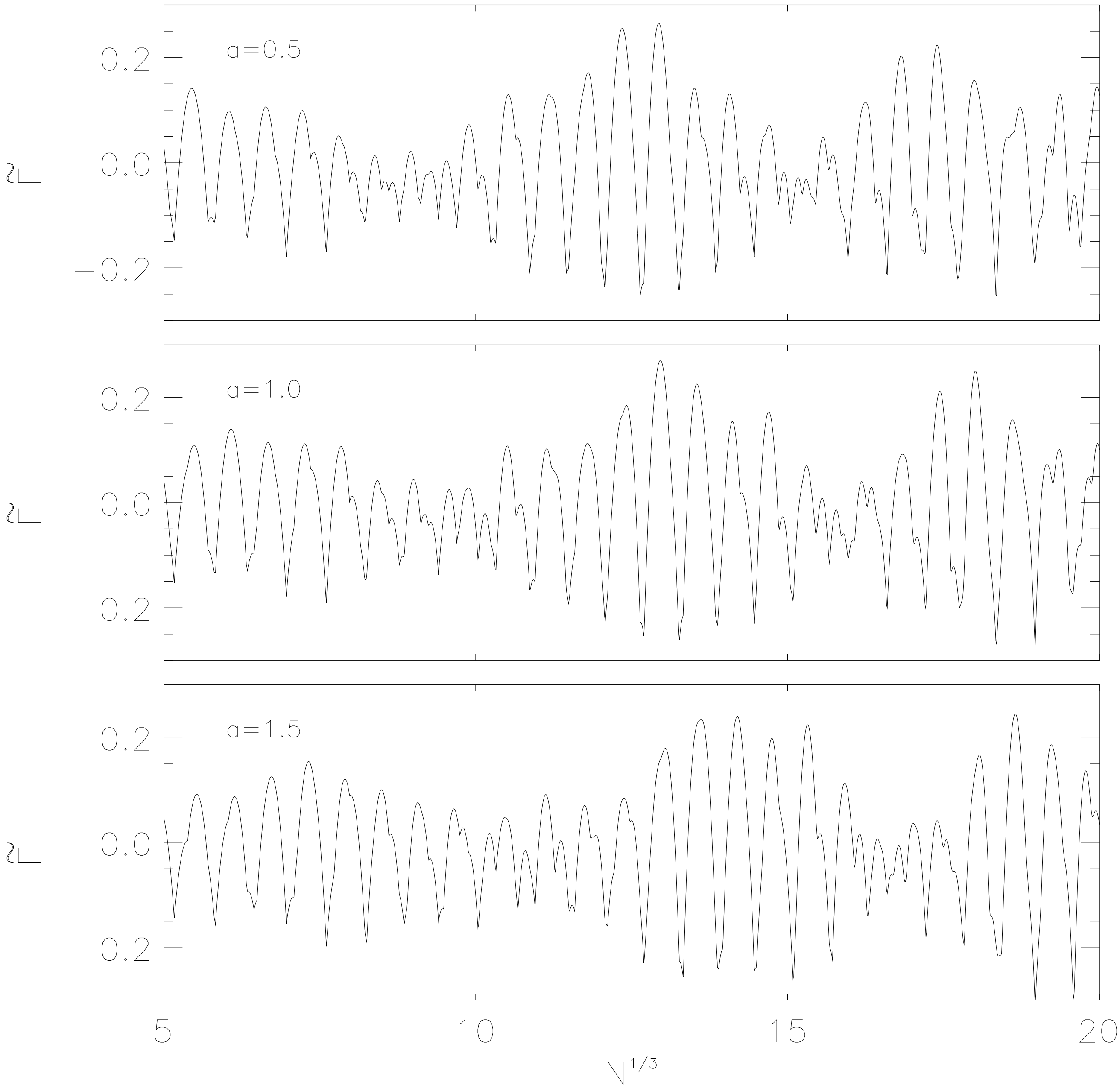


Abbildung 6.2: Oszillierender Anteil der Gesamtenergie für die Woods-Saxon Potentiale aus Abbildung 6.1. Man sieht deutlich, wie die Knoten der Superschalen-Schwebung mit wachsendem Randparameter a zu größeren N verschoben werden.

nur die radiale Wirkung an der Fermi-Energie

$$s_r(V; E_F, L) = \int_{r_{in}}^{r_{out}} \sqrt{2m(E_F - V(r)) - L^2/r^2}\, dr \tag{6.1}$$

bestimmen. Leider läßt sich dieses Integral im allgemeinen nicht analytisch lösen. So scheitert etwa im Falle des Woods-Saxon Potentials die Berechnung mittels des Residuensatzes an einer wesentlichen Singularität bei $r = \infty$. Um s_r dennoch exakt zu bestimmen, kann man natürlich (6.1) numerisch integrieren [65, 66]. Dabei verliert man jedoch einen großen Teil der Anschaulichkeit, die den semiklassischen Zugang auszeichnet. Da es sich bei (4.48) aber selbst schon um eine Näherung (nämlich die führende Ordnung der semiklassischen Entwicklung) handelt, ist es nicht nötig, $s_r(V; E, L)$ exakt zu kennen. Zum Gebrauch in (4.48) genügt bereits die führende Ordnung in R_0.

6.1 Leptoderme Entwicklung

Um $s_r(V; E, L)$ näherungsweise zu bestimmen, versuchen wir eine Entwicklung um den Grenzfall der sphärischen Kavität. Wir nehmen dabei an, daß sich die tatsächlichen Cluster-Potentiale $V(N; r)$ nicht zu sehr von Kavitäten unterscheiden. D.h. wir gehen davon aus, daß die Ausdehnung a des Randes gering und das Potential für $r \ll R_0 - a$ praktisch konstant ist. Wegen dieser „Dünnhäutigkeit“ ($a/R_0 \ll 1$) der Potentiale nennen wir unsere Entwicklung um den Grenzfall der Kavität *leptoderm*.

Betrachten wir also ein Cluster-Potential $V(N; r) = -V_0\, f(R_0, a; r)$. Seine Tiefe sei durch V_0, die Ausdehnung durch R_0 und der Rand durch a charakterisiert. Wie im Fall der Kavität gehen wir wieder auf reduzierte Größen über:

$$p := \sqrt{2m(E - V_0)} \qquad P := \sqrt{\frac{E + V_0}{V_0}} \qquad P_F := \sqrt{\frac{E_F + V_0}{V_0}}$$

$$\hat{r} := \frac{r}{R_0} \qquad \hat{a} := \frac{a}{R_0} \qquad \hat{L} := \frac{L}{pR_0} \qquad \hat{S} := \frac{S}{pR_0} \cdots$$

Durch den Ansatz

$$s_r(V; E_F, L)/\hbar = k_F R_0\, \hat{s}_r(P_F, \hat{L}, \hat{a}) \tag{6.2}$$

machen wir die führende Ordnung in R_0 explizit. Gleichzeitig haben wir damit die Bestimmung der radialen Wirkung in zwei Teilprobleme zerlegt:

1. Die Bestimmung der asymptotischen Entwicklung des Fermi-Wellenvektors als Funktion des Oberflächenparameters a.

2. Die Entwicklung der reduzierten radialen Wirkung $\hat{s}_r(P, \hat{L}, \hat{a})$ nach $\hat{a}$.

Wir zeigen nun, wie man den Oberflächenterm in der asymptotischen Entwicklung von $\bar{k}_F r_s$ bestimmt und wie man aus einer Entwicklung der reduzierten radialen Wirkung nach

$\hat{a}$ eine solche für die reduzierte klassische Wirkung findet. Anschließend kombinieren wir diese Ergebnisse, um die POE (4.48) in führender Ordnung des Oberflächenparameters a zu bestimmen.

6.1.1 Asymptotische Entwicklung für $\bar{k}_F r_s$

Der Fermi-Wellenvektor ist in einem unendlich ausgedehnten System direkt mit dem Wigner-Seitz Radius verknüpft: $k_F = \left(\frac{9\pi}{4}\right)^{1/3} \frac{1}{r_s}$. In endlichen Systemen gilt diese Relation nicht mehr exakt. Die wichtigste Korrektur zu $k_F(N)$ rührt dabei von der Oberfläche des Systems her [67]:

$$\bar{k}_F r_s = \left(\frac{9\pi}{4}\right)^{1/3} + c_F\, N^{-1/3} + \cdots \tag{6.3}$$

Wir können den Oberflächen-Koeffizienten c_F berechnen. Dazu gehen wir vom Thomas-Fermi Integral für die Teilchenzahl aus:

$$N = \int_{E>V(\vec{r})} d^3r\, \frac{\bar{k}_F(\vec{r}\,)^3}{3\pi^2}$$

Dieser Ausdruck berücksichtigt per definitionem nur das Potential im klassisch erlaubten Bereich. Den Einfluß der Randbedingungen auf die Teilchenzahl kann man summarisch durch die quantenmechanische Streuphase $\varphi(k)$ am Potentialrand beschreiben. Damit findet man [53]:

$$N = \frac{4}{3\pi} \int_0^{r_{out}} \left(\frac{2m\big(\bar{E}_F - V(r)\big)}{\hbar^2}\right)^{3/2} r^2\, dr + \frac{4R_0^2}{\pi} \int_0^{\bar{k}_F} \left(\frac{\pi}{4} - \varphi(k)\right) k\, dk + \mathcal{O}(N^{-1/3}) \tag{6.4}$$

Nehmen wir an, daß sich das Thomas-Fermi Integral nach a um den Grenzfall der sphärischen Kavität entwickeln läßt

$$\int_0^{r_{out}} \left(\frac{2m\big(\bar{E}_F - V(r)\big)}{\hbar^2}\right)^{3/2} r^2\, dr = \frac{(k_F R_0)^3}{3} + (k_F R_0)^3 \hat{I}_N(P_F)\, \hat{a} + \cdots$$

und bezeichnen wir das zweite Integral in (6.4) mit $k_F^2\, \hat{I}_A(P_F)$, so finden wir mit Hilfe von $R_0 = r_s\, N^{1/3}$ die Gleichung

$$N = \frac{4}{9\pi}(k_F r_s)^3 N + \frac{4}{3\pi} \hat{I}_N(P_F)\, \frac{a}{r_s}\, (k_F r_s)^3 N^{2/3} + \frac{4}{\pi}\, \hat{I}_A(P_F)\, (k_F r_s)^2 N^{2/3}$$

Setzen wir den Ansatz (6.3) ein, so finden wir durch Koeffizientenvergleich die leptoderme Entwicklung für den Oberflächenterm in der asymptotischen Entwicklung von $\bar{k}_F r_s$

$$c_F = -3\hat{I}_A(P_F) - \left(\frac{9\pi}{4}\right)^{1/3} \hat{I}_N(P_F)\, \frac{a}{r_s} \tag{6.5}$$

6.1.2 Entwicklung der reduzierten klassischen Wirkung

Als Ausgangspunkt nehmen wir an, daß sich die reduzierte radiale Wirkung um den Grenzfall der Kavität entwickeln läßt

$$\hat{s}_r(P,\hat{L},\hat{a}) = \hat{s}_r^{cavity}(\hat{L}) + \hat{I}_s(P,\hat{L})\,\hat{a} + \mathcal{O}(\hat{a}^2) \tag{6.6}$$

wobei $\hat{s}_r^{cavity}$ durch den Ausdruck (4.28) gegeben ist. Um den Drehimpuls einer Bahn (λ,ν) als Funktion des Potentialparameters $\hat{a}$ zu bestimmen, setzen wir die Entwicklung in die Periodizitätsbedingung (4.22) ein.

$$\frac{\pi\lambda}{\nu} = \Phi = -\frac{\partial \hat{s}_r}{\partial \hat{L}} = \arccos(\hat{L}) - \frac{\partial \hat{I}_s}{\partial \hat{L}}\,\hat{a} + \mathcal{O}(\hat{a}^2)$$

Differenzieren wir diese Gleichung an der Stelle $\hat{a} = 0$ nach $\hat{a}$, so finden wir für die Änderung des Drehimpulses der Bahn (λ,ν) mit dem Parameter $\hat{a}$ die Entwicklung

$$\hat{L}_{(\lambda,\nu)} = \hat{L}_{(\lambda,\nu)}^{cavity} - \sqrt{1-\left(\hat{L}_{(\lambda,\nu)}^{cavity}\right)^2}\;\frac{\partial \hat{I}_s\left(P,\hat{L}_{(\lambda,\nu)}^{cavity}\right)}{\partial \hat{L}}\,\hat{a} + \mathcal{O}(\hat{a}^2) \tag{6.7}$$

D.h. läßt sich $\hat{s}_r$ nach $\hat{a}$ entwickeln, so existiert auch eine solche Entwicklung für den reduzierten Drehimpuls der periodischen Bahnen.

Um nun eine entsprechende Entwicklung der reduzierten klassischen Wirkung einer gegebenen periodischen Bahn (λ,ν) zu bestimmen, setzen wir (6.7) und (6.6) in die Definitionsgleichung (vgl. (4.24)) ein

$$\begin{aligned}
\hat{s}(P,\hat{L}_{(\lambda,\nu)},\hat{a}) &= \hat{s}_r\left(P,\hat{L}_{(\lambda,\nu)},\hat{a}\right) + \frac{\pi\lambda}{\nu}\,\hat{L}_{(\lambda,\nu)} \\
&= \hat{s}^{cavity}\left(\hat{L}_{(\lambda,\nu)}\right) + \left(\hat{I}_s\left(P,\hat{L}_{(\lambda,\nu)}\right) - \frac{\pi\lambda}{\nu}\sqrt{1-\left(\hat{L}_{(\lambda,\nu)}^{cavity}\right)^2}\;\frac{\partial \hat{I}_s\left(P,\hat{L}_{(\lambda,\nu)}^{cavity}\right)}{\partial \hat{L}}\right)\hat{a} + \mathcal{O}(\hat{a}^2)
\end{aligned}$$

Schreiben wir nun noch $\hat{s}^{cavity}(\hat{L}_{(\lambda,\nu)})$ als Taylorentwicklung um $\hat{L} = \hat{L}_{(\lambda,\nu)}^{cavity}$, d.h. entwickeln wir $\hat{s}$ um die reduzierte klassische Wirkung der periodischen Bahn (λ,ν) in der Kavität, so heben sich die linearen Terme bis auf $\hat{I}_s$ weg. Die leptoderme Entwicklung für die reduzierte klassische Wirkung lautet damit

$$\hat{s}\left(P,\hat{L}_{(\lambda,\nu)},\hat{a}\right) = \hat{s}^{cavity}\left(\hat{L}_{(\lambda,\nu)}^{cavity}\right) + \hat{I}_s\left(P,\hat{L}_{(\lambda,\nu)}^{cavity}\right)\,\hat{a} + \mathcal{O}(\hat{a}^2) \tag{6.8}$$

Sie ist also allein schon durch die Entwicklung der reduzierten radialen Wirkung bestimmt.

6.1.3 Leptoderme Entwicklung der POE

Wir geben nun die führende Ordnung der Periodic-Orbit-Expansion für den oszillierenden Anteil der Gesamtenergie an:

$$\tilde{E} \approx \sum_{(\lambda,\nu)} B_{(\lambda,\nu)} \cos\left(\hat{S}_{(\lambda,\nu)}\,\bar{k}_F R_0 - \varphi_{(\lambda,\nu)}\right)$$

Dabei gehen wir davon aus, daß die oben gemachte Annahme (6.6) über die Entwickelbarkeit der reduzierten radialen Wirkung zutrifft. Wie gesehen läßt sich dann auch der Drehimpuls einer gegebenen periodischen Bahn um den Grenzfall der Kavität entwickeln. Aus der Definitionsgleichung der Amplituden

$$B_{(\lambda,\nu)} = \frac{16}{\sqrt{\pi\nu}}\,\frac{E_F^2}{S_{(\lambda,\nu)}^2/\hbar^2}\,\frac{L_{(\lambda,\nu)}}{\hbar}\,\frac{\partial s_r/\hbar}{\partial E}\left|\frac{\partial^2 s_r \hbar}{\partial L^2}\right|^{-1/2}$$

(vgl. (4.48) und (4.26)) folgt damit direkt, daß auch die $B_{(\lambda,\nu)}$ in führender Ordnung durch ihren Wert im Fall der sphärischen Kavität gegeben sind.

Die Entwicklung der Phasen finden wir durch Einsetzen der asymptotischen Entwicklung für $\bar{k}_F r_s$, der Entwicklung von $\hat{s}_{(\lambda,\nu)}$ sowie der Maslov-Phase $\varphi_{(\lambda,\nu)} = \Big((1/2+\phi_{out})\nu + \lambda - 1/4\Big)\pi$ (vgl. Anhang B). Definieren wir

$$\Delta c_F = c_F - c_F^{cavity} \qquad \text{wobei} \quad c_F^{cavity} = \frac{3\pi}{8} \tag{6.9}$$

$$\Delta\phi_{out} = \phi_{out} - \phi_{out}^{cavity} \qquad \text{wobei} \quad \phi_{out}^{cavity} = \frac{1}{2} \tag{6.10}$$

so ergibt sich

$$S_{(\lambda,\nu)}/\hbar - \varphi_{(\lambda,\nu)} = S_{(\lambda,\nu)}^{cavity}/\hbar - \varphi_{(\lambda,\nu)}^{cavity} \underbrace{+2\nu\left(\hat{s}_{(\lambda,\nu)}^{cavity}\Delta c_F + \left(\frac{9\pi}{4}\right)^{1/3}\hat{I}_s\,\frac{a}{r_s} - \frac{\pi}{2}\,\Delta\phi_{out}\right)}_{=:\,-\delta_{(\lambda,\nu)}} \tag{6.11}$$

Dabei enthält der Korrektur-Term $\delta_{(\lambda,\nu)}$ ausschließlich reduzierte Größen. Die Oszillationen mit $N^{1/3}$ werden deshalb weiterhin durch $S_{(\lambda,\nu)}^{cavity}$ beschrieben. *Die Änderung der Potentialform an der Cluster-Oberfläche bewirkt also in führender Ordnung lediglich eine Phasenverschiebung in der Periodic-Orbit-Expansion.* Wie die Herleitung zeigt, gilt dieses Resultat für beliebige Potentiale, sofern nur die reduzierte radiale Wirkung gemäß (6.6) entwickelbar ist.

6.2 Schwebungs-Argument

Wir sind nun in der Lage, dem Schwebungs-Argument aus Kapitel 3 Substanz zu verleihen. Wie wir bei der Bestimmung der Amplituden für die Periodic-Orbit-Expansion von $\tilde{E}$ gesehen haben, gibt es tatsächlich zwei dominierende Bahnen: die dreieckige und die quadratische (vgl. Abb. 4.7 und die Diskussion auf Seite 74):

$$\tilde{E}(N) \approx \sqrt{\bar{k}_F R_0}\, \bar{k}_F^2 \left\{ \beta_{(1,3)} \cos\left(S_{(1,3)}/\hbar - \varphi_{(1,3)}\right) + \beta_{(1,4)} \cos\left(S_{(1,4)}/\hbar - \varphi_{(1,4)}\right)\right\} \tag{6.12}$$

Wie wir von Abbildung 4.8 ablesen, sind durch diese beiden Orbits die Positionen der Schalen-Minima bereits festgelegt. Lediglich im Bereich der Superschalen-Knoten, wo sich die Beiträge der beiden Bahnen weginterferieren, ist die Situation komplizierter: Dort werden die Terme mit kleinerer Amplitude $\beta_{(\lambda,\nu)}$ wichtig. Insbesondere können wir daher aus (6.12) nicht die genaue Position der Superschalen-Knoten bestimmen. Interessieren wir uns aber nur für die Verschiebung des Knoten-Bereiches, innerhalb dessen dann die kleineren $\beta_{(\lambda,\nu)}$ merklich beitragen, sollte es genügen, sich auf die Betrachtung der Dreieck- und Quadrat-Bahnen, deren Interferenz den Knoten hervorruft, zu beschränken.

Wir hatten nun in (6.11) erkannt, daß sich bei Variation der Potentialform in der POE lediglich die Phasen ändern. Wie am Ende von Kapitel 3 beschrieben, werden die Schalen und Superschalen daher nur verschoben, wobei ihr Abstand gleich bleibt. Das Ausmaß der Verschiebung gegenüber der Position im Fall der Kavität läßt sich mit Hilfe der Gleichungen (3.12), (3.13) und (6.11) ermitteln. Für die Schalen-Minima finden wir

$$\Delta N_{shell}^{1/3} = \left(\frac{9\pi}{4}\right)^{-1/3} \frac{\delta_{(1,3)} + \delta_{(1,4)}}{\hat{S}_{(1,3)}^{cavity} + \hat{S}_{(1,4)}^{cavity}} \tag{6.13}$$

Entsprechend lautet die Verschiebung der Superschalen

$$\Delta N_{supershell}^{1/3} = \left(\frac{9\pi}{4}\right)^{-1/3} \frac{\delta_{(1,3)} - \delta_{(1,4)}}{\hat{S}_{(1,3)}^{cavity} - \hat{S}_{(1,4)}^{cavity}} \tag{6.14}$$

Der allgemeine Formalismus unserer leptodermen Entwicklung liefert uns also unabhängig von der konkreten Form des Cluster-Potentials schon folgende Aussagen: *Durch eine Änderung der Potentialform an der Cluster-Oberfläche werden die Schalen und Superschalen in führender Ordnung lediglich verschoben. Diese Verschiebung ist für alle Schalen- bzw. Superschalen-Minima gleich. Insbesondere ändern sich die Abstände der Minima nicht. Die „Frequenzen“ der Schalen- und Superschalen-Oszillationen bleiben also* *unverändert.* In diesem Sinne handelt es sich bei diesen Frequenzen um Volumengrößen, die durch Oberflächen-Effekte nicht beeinflußt werden. Die Phasen der Schalen- bzw. Superschalen-Oszillationen sind dagegen Größen, die unmittelbar von den Oberflächen-Eigenschaften des betrachteten Clusters abhängen.

Diese Resultate befinden sich mit den Ergebnissen aus Kapitel 3 in Einklang. Wir können jedoch bisher noch keine Aussage über das Ausmaß der Phasenverschiebungen machen. Insbesondere liefert uns obige Betrachtung noch keinen Hinweis darauf, daß die Schalen eine recht spezielle Art der Phasenverschiebung aufweisen, nämlich eine solche, die praktisch unabhängig vom betrachteten Potential ist.

6.3 Abschätzung der Phasenverschiebungen

Um die Phasenverschiebungen der Schalen bzw. Superschalen abzuschätzen, betrachten wir Woods-Saxon Potentiale

$$V(r) = \frac{-V_0}{1 + e^{\frac{r-R_0}{a}}}$$

Die relevanten Größen für diesen Potentialtyp werden im Anhang bestimmt. Im einzelnen finden wir:

- Das linearisierte Wirkungsintegral (A.11)

$$\hat{I}_s(P, \hat{L}) = \frac{2}{P}\left(P_L \ln\left(2P_L\right) - \sqrt{1 - P_L^2}\ \arcsin\left(P_L\right)\right)$$

- Das linearisierte Thomas-Fermi Integral (A.16)

$$\hat{I}_N(P) = 2\left(\ln(2P) + \left(\frac{1}{P^2} - 1\right)^{3/2} \arcsin(P) - \frac{1}{P^2}\right)$$

- Die quantenmechanische Streuphase (B.9):

$$\varphi(k) = \frac{\pi}{2} - \arcsin(P)$$

Damit ergibt sich aus (6.9) und (6.5)

$$\Delta c_F = -\frac{3}{4}\hat{I}_B(P_F) - \left(\frac{9\pi}{4}\right)^{1/3} \hat{I}_N(P_F)\,\frac{a}{r_s}$$

mit

$$\hat{I}_B(P_F) := \left(2 - \frac{1}{P_F^2}\right)\arcsin(P_F) + \sqrt{\frac{1}{P_F^2} - 1}$$

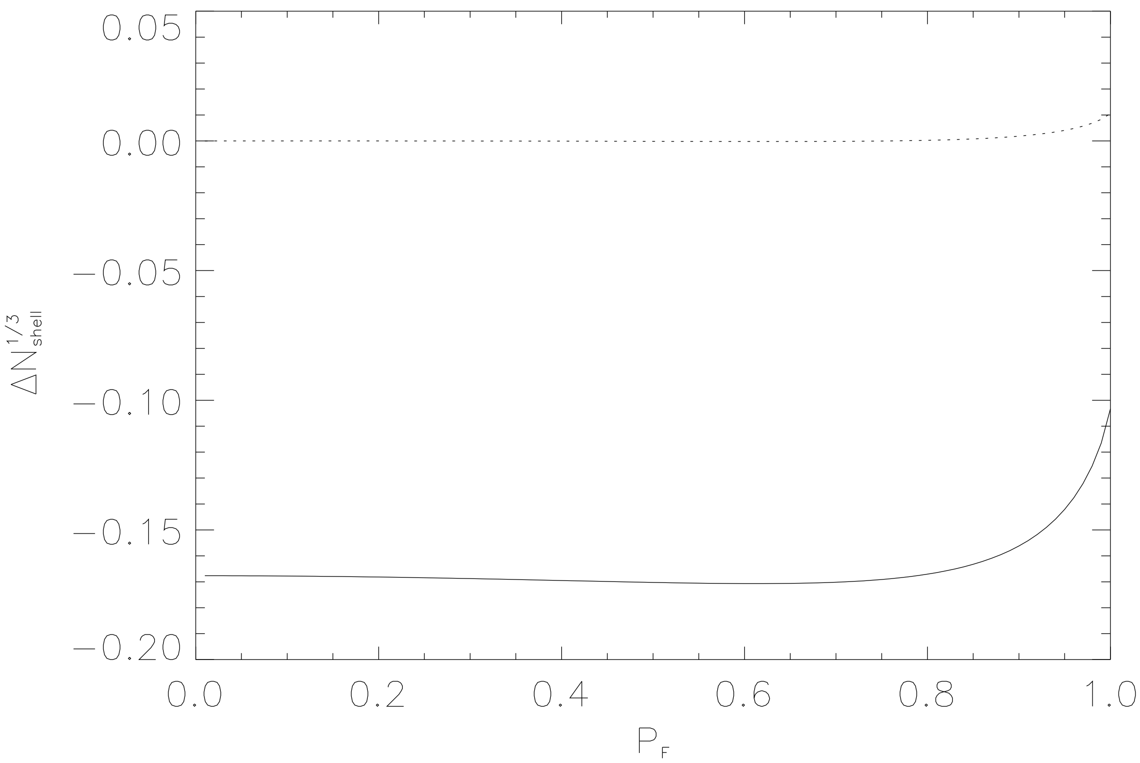


Abbildung 6.3: Verschiebung der Schalen $\Delta N^{1/3}_{shell} = \Delta N^{1/3}_0 + \Delta N^{1/3}_1 \frac{a}{r_s}$. Die gepunktete Linie gibt den a-unabhängigen, die durchgezogene den zu a proportionalen Anteil wieder.

- Die Maslov-Phase (B.10)

$$\frac{\pi}{2}\,\Delta\phi_{out}(P_L) = -\frac{2}{\pi}\,\arcsin(P_L)$$

Wir können damit die Phasenverschiebungen in der POE angeben. Sie zerfallen in einen Anteil, der nur von der Tiefe des Potentials abhängt, sowie einen Anteil proportional zum Rand-Parameter a:

$$\begin{aligned} \delta_{(\lambda,\nu)} &= \left\{\frac{3}{4}\,\hat{S}^{cavity}_{(\lambda,\nu)}\,\hat{I}_B(P_F) - 2\nu\,\arcsin(P_L)\right\} \\ &\quad + \left(\frac{9\pi}{4}\right)^{1/3}\left\{\hat{S}^{cavity}_{(\lambda,\nu)}\,\hat{I}_N(P_F) - 2\nu\,\hat{I}_s(P_F,\hat{L}^{cavity}_{(\lambda,\nu)})\right\}\,\frac{a}{r_s} \end{aligned}$$

Die daraus resultierenden Verschiebungen der Schalen bzw. Superschalen sind in den Abbildungen 6.3 und 6.4 dargestellt. Wie erwartet geht die a-unabhängige Verschiebung $N^{1/3}_0$ für $P \to 0$ gegen Null, d.h. gegen den Grenzfall der Kavität. Er bleibt aber auch für größere P (d.h. weniger tiefe Potential-Töpfe) sehr klein. Der von a unabhängige Anteil

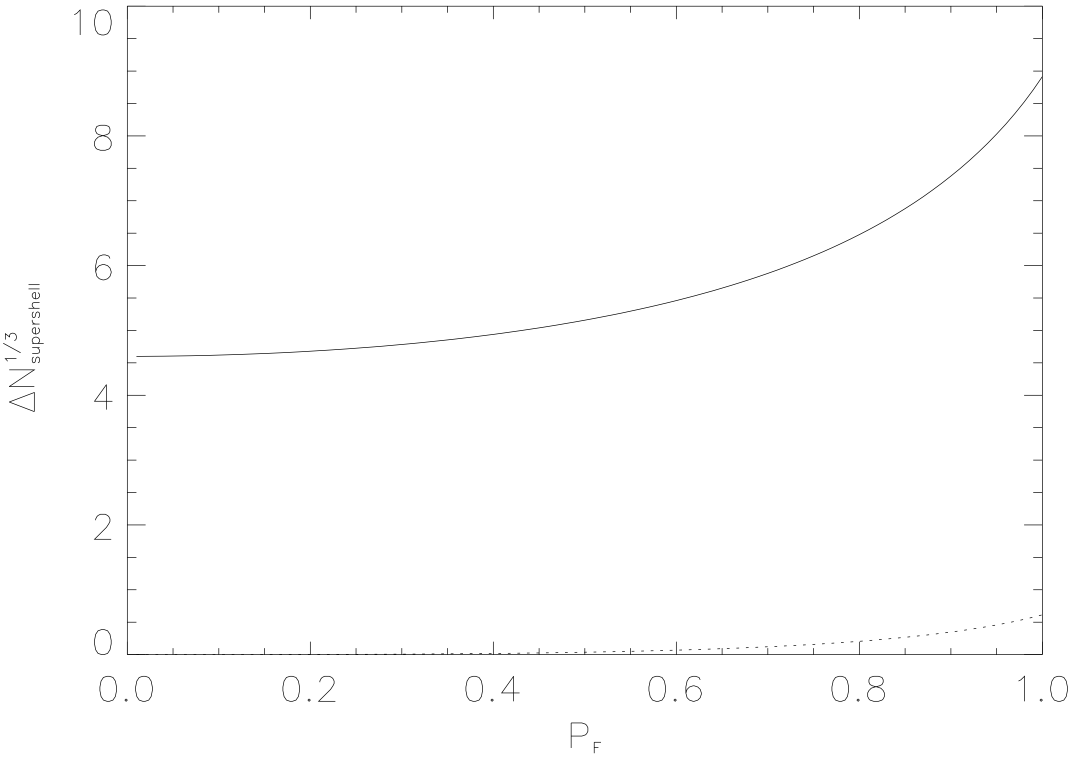


Abbildung 6.4: Verschiebung der Superschalen $\Delta N^{1/3}_{supershell} = \Delta N_0^{1/3} + \Delta N_1^{1/3} \frac{a}{r_s}$. Die gepunktete Linie gibt den a-unabhängigen, die durchgezogene den zu a proportionalen Anteil wieder.

trägt also praktisch nicht zur Verschiebung der Schalen bzw. Superschalen bei. Dagegen ist der zum Rand-Parameter proportionale Anteil $N_1^{1/3}$ sowohl für die Schalen als auch für die Superschalen von Null verschieden.

Wir sind nun in der Lage, unsere leptoderme Entwicklung mit den Resultaten aus Kapitel 3 zu vergleichen. Dazu müssen wir die selbstkonsistenten Potentiale aus unseren Jellium-Rechnungen durch analytische Ausdrücke fitten. Soll die Näherung für alle r gut sein, so müssen wir eine Potential-Funktion wählen, die der starken Asymmetrie des Potential-Randes Rechnung tragen kann (vgl. Abb. 3.8). Tatsächlich erstrecken sich die semiklassischen Integrale aber nur über den klassisch erlaubten Bereich, während wir die Randbedingungen mittels der quantenmechanischen Streuphase berücksichtigt haben. Es genügt daher, das Potential im Bereich $V(r) < E_F$ gut zu beschreiben. Dafür ist schon das einfache Woods-Saxon Potential geeignet. Wir bestimmen also die für die Semiklassik benötigten Potential-Parameter, indem wir die selbstkonsistenten Potentiale für Cluster

material	r_s	E_F	V_0	ΔR	a	a/r_s	$\Delta R/r_s$	P_F
Cs	5.62	−0.17	0.29	1.30	0.78	0.14	0.23	0.63
Rb	5.20	−0.18	0.32	1.56	0.94	0.18	0.30	0.65
K	4.86	−0.19	0.35	1.46	0.91	0.19	0.30	0.67
Na	3.93	−0.22	0.46	1.36	0.94	0.24	0.35	0.72
Li	3.25	−0.24	0.59	1.20	0.94	0.29	0.37	0.77
Au	3.01	−0.25	0.65	1.10	0.89	0.30	0.36	0.79
Ag	3.02	−0.25	0.65	1.10	0.90	0.30	0.36	0.79
Cu	2.67	−0.26	0.78	1.01	0.90	0.34	0.38	0.82
Tl	2.48	−0.27	0.86	0.97	0.91	0.37	0.39	0.83
In	2.41	−0.27	0.90	0.94	0.89	0.37	0.39	0.84
Ga	2.19	−0.28	1.04	0.86	0.88	0.40	0.39	0.86
Al	2.07	−0.28	1.14	0.81	0.87	0.42	0.39	0.87

Tabelle 6.1: Fitparameter für leptoderme Entwicklung

verschiedener Größe[1] im klassisch erlaubten Bereich durch das Potential

$$V(N;r) = \frac{-V_0}{1 + \exp\left(\frac{r-\left(r_s N^{1/3}+\Delta R\right)}{a}\right)}$$

fitten. Die so gefundenen Potential-Parameter sind in Tabelle 6.1 aufgelistet. Wie sich zeigt, liegen die typischen Werte für a/r_s im Bereich von 0.14 für Cäsium bis 0.42 für Aluminium. Die Verschiebung der Schalen liegt also in der Größenordnung 0.05, diejenige für die Superschalen bei etwa 2.5. Vergleichen wir das mit den Abständen der Schalen bzw. Superschalen von $\delta N^{1/3} = 0.6$ bzw. $\delta N^{1/3} = 7.1$, so sehen wir, daß die Schalen kaum, die Superschalen dagegen merklich verschoben werden.

Abbildung 6.5 zeigt den Vergleich der mittels leptodermer Entwicklung bestimmten Superschalen-Verschiebungen mit denjenigen, die wir in Kapitel 3 aus den Jellium-Rechnungen ermittelt haben.

[1] Es wurden jeweils die Cluster mit 1500, 3000, 4500 und 6000 Elektronen gewählt. Die entsprechenden Potentiale für Natrium und Gallium sind in Abb. 3.8 dargestellt.

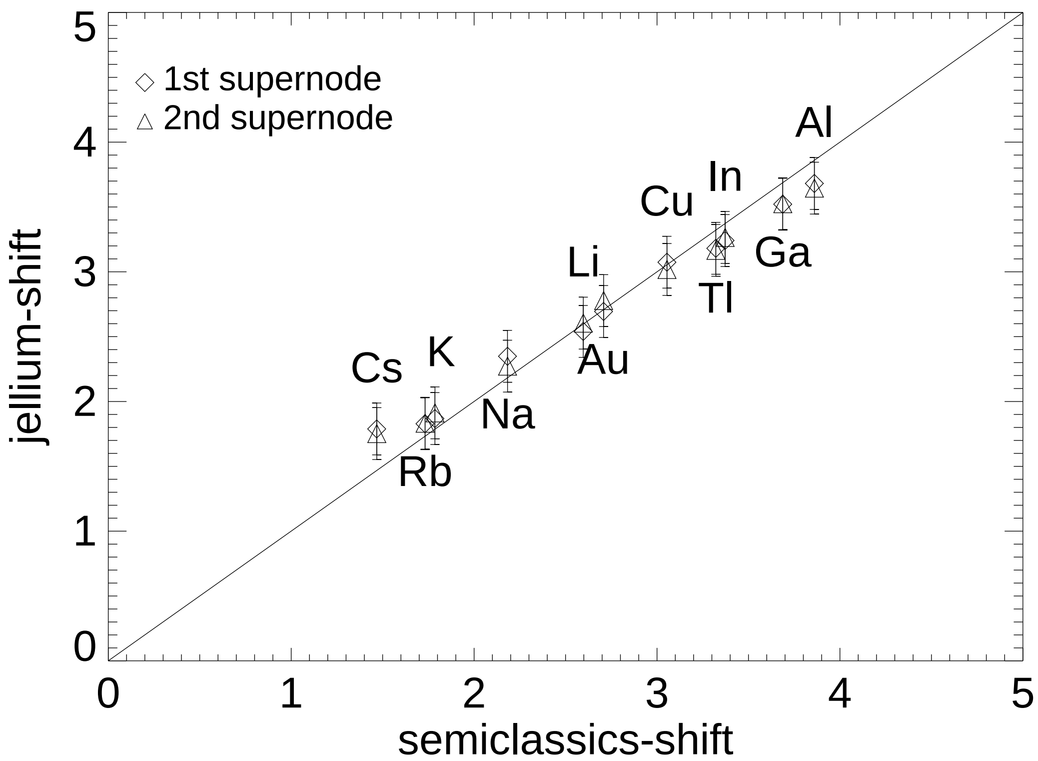


Abbildung 6.5: Verschiebung der Superschalen-Knoten. Vergleich der aus den selbstkonsistenten Jellium-Rechnungen gewonnenen Verschiebungen $\Delta N^{1/3}_{supershell}$ mit den mittels der leptodermen Entwicklung bestimmten. Für die semiklassische Rechnung wurden die Fit-Potentiale aus Tabelle 6.1 verwendet. Die Fehlerbalken für die Jellium-Werte sind dieselben wie in Abbildung 3.11.

Trotz der vielen Näherungen

- Fit der selbstkonsistenten Potentiale mittels eines Woods-Saxon Potential beschreibt Friedel-Oszillationen nicht
- Linearisierung der semiklassischen Integrale
- Schwebungsargument vernachlässigt alle Bahnen, außer der dreieckigen und quadratischen

wird das Ausmaß der Superschalen-Verschiebung und die Vernachlässigbarkeit der Schalen-Verschiebung durch unsere semiklassische Rechnung erstaunlich gut wiedergegeben.

Wir können also die Resultate der Skalenanalyse aus Kapitel 3 tatsächlich im Sinne einer Phasenverschiebung in einem Schwebungsmuster interpretieren. Die Phasenverschie-

bung ergibt sich dabei als Oberflächen-Effekt aus der Abhängigkeit der radialen Wirkung von der Form des Potentials an der Cluster-Oberfläche.

Unsere leptoderme Entwicklung liefert also eine gute Beschreibung der selbstkonsistenten Jellium-Rechnungen. Umgekehrt können wir nun angeben, von welchen Eigenschaften der (selbstkonsistenten) Cluster-Potentiale die Position der Schalen und Superschalen abhängt: Zunächst finden wir, daß nur der Potential-Verlauf im klassisch erlaubten Bereich von Interesse ist. Der entscheidende Potential-Parameter ist dabei die Ausdehnung des Potential-Randes in Einheiten des Wigner-Seitz Radius a/r_s. Daneben wird das Ausmaß der Superschalen-Verschiebung noch durch das Verhältnis der Fermi-Energie zur Topf-Tiefe $P_F = \sqrt{\frac{E_F+V_0}{V_0}}$ bestimmt (siehe Abb. 3.11). Dagegen ist die Lage der Schalen und Superschalen praktisch unabhängig vom Auftreten einer Cluster-Kontraktion.