Kapitel 3

Jellium Ergebnisse

Um die Stabilitätsunterschiede von Clustern zu untersuchen, bestimmen wir die Gesamtenergie $E(N)$ homogener, sphärischer Jellium-Cluster als Funktion ihrer Größe. Betrachtet werden Dichten im Bereich $r_s = 2 \ldots 6\, a_0$, als konkrete Werte wählen wir die Wigner-Seitz Radien der Metalle der ersten und dritten Hauptgruppe (Li, Na, K, Rb, Cs; Al, Ga, In, Tl) sowie Cu und Au aus der Nebengruppe IB:

	Cs	Rb	Na	K	Li	Au	Cu	Tl	In	Ga	Al
r_s $[a_0]$	5.62	5.20	4.86	3.93	3.25	3.01	2.67	2.48	2.41	2.19	2.07

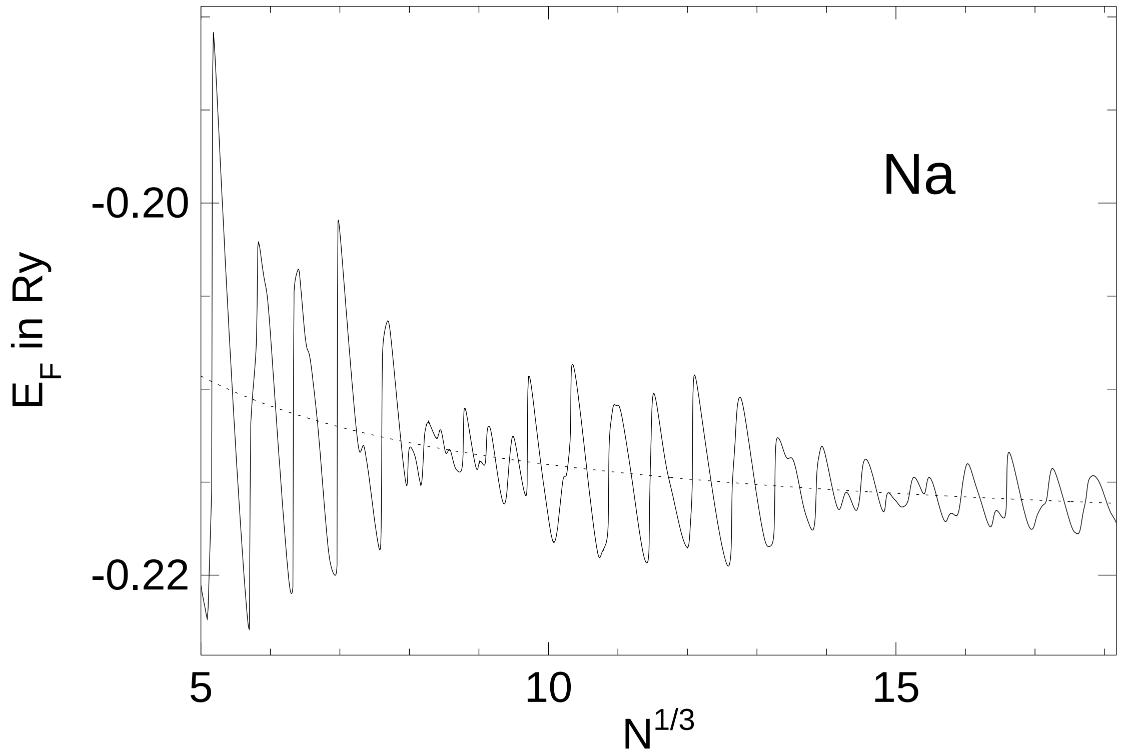
Tabelle 3.1: Wigner-Seitz-Radien für die Jellium-Rechnungen

Die Größe der untersuchten Cluster reicht jeweils von 125 bis 6000 Valenzelektronen N. Wie sich zeigt, umfaßt dieser Bereich für alle betrachteten Dichten die ersten beiden Superschalen.

Die starke Abhängigkeit der physikalischen Eigenschaften von der Cluster-Größe, besonders für kleine Cluster, wird bereits an den ausgeprägten Oszillationen der Fermi-Energie $E_F(N)$ um ihren asymptotischen Verlauf

$$\bar{E}_F(N) = c_1 + c_2\, N^{-1/3} + \cdots \tag{3.1}$$

deutlich. Es ist klar, daß diese Oszillationen von der Existenz diskreter Energieniveaus herrühren. Den mittleren Verlauf kann man aus Thomas-Fermi-artigen Modellen, welche



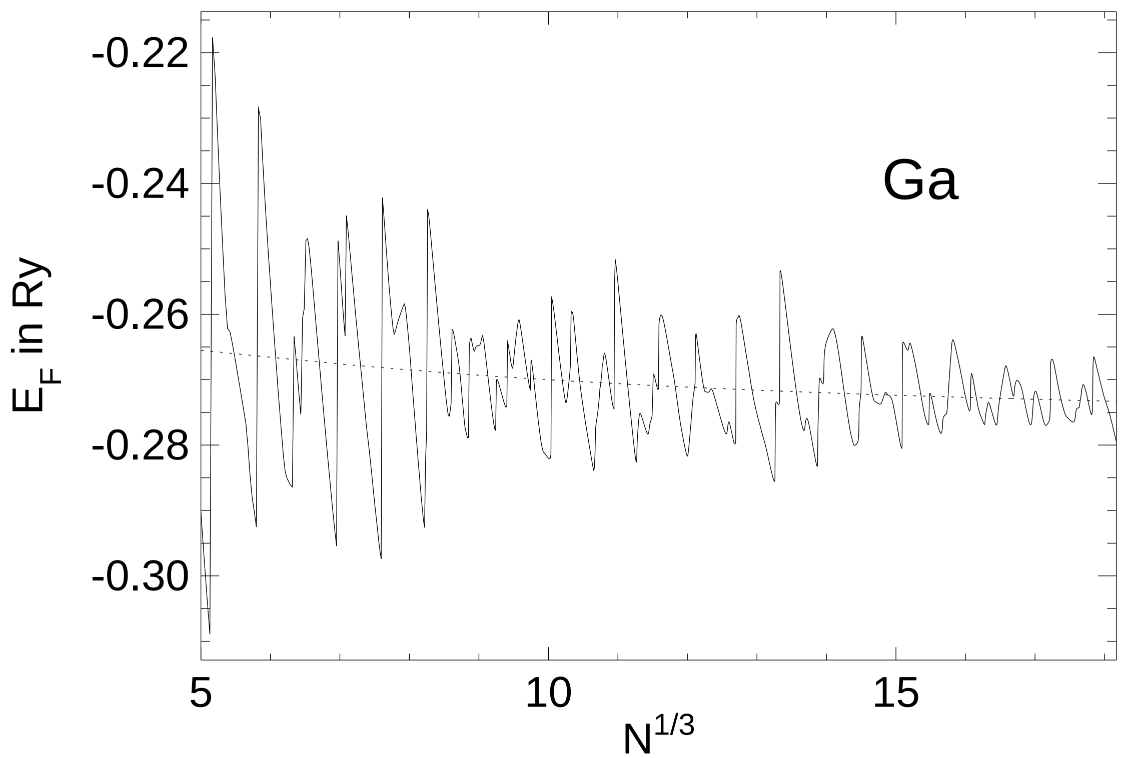


Abbildung 3.1: Fermi Energie für Jellium Cluster als Funktion ihrer Größe. Die unterlegte gestrichelte Kurve gibt den asymptotischen Verlauf von $E_F(N)$ wieder.

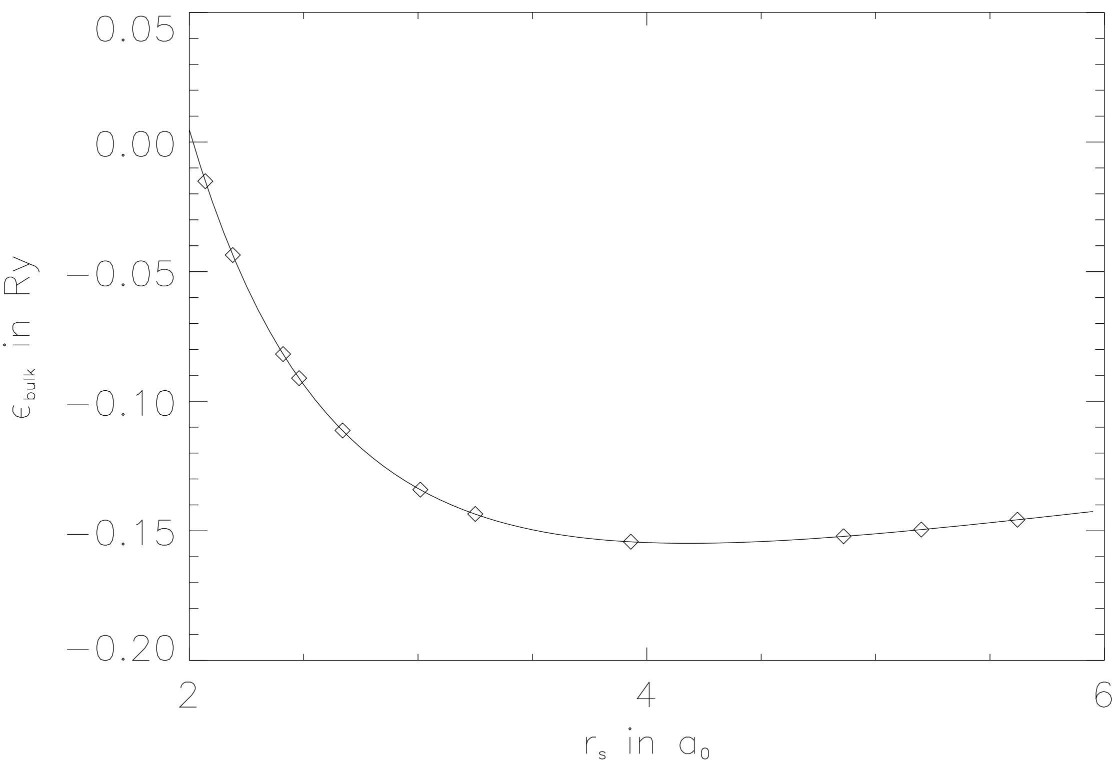


Abbildung 3.2: Bulk-Energie des neutralisierten Elektronengases (durchgezogene Linie) sowie Entwicklungskoeffizienten a_1 aus unseren Jellium Rechnungen

von der Diskretheit des Spektrums absehen, gewinnen [38].

Um die *Stabilität* der Cluster als Funktion ihrer Größe zu untersuchen, müssen wir die Gesamtenergie $E(N)$ betrachten. Auch hierfür existiert eine asymptotische Entwicklung

$$\bar{E}(N) = a_1\, N + a_2\, N^{2/3} + \cdots \tag{3.2}$$

um welche die Gesamtenergie oszilliert. Wir bestimmen $\bar{E}(N)$ durch die numerische Anpassung einer Funktion der Form (3.2) an die Jellium-Daten $E(N)$. Indem wir die Fitparameter mit physikalischen Größen in Verbindung bringen, können wir die Güte des Fits abschätzen:

1. Im Limes $N \to \infty$ dominiert der a_1-Term. Es muß sich dabei also um die bulk-Energie pro Teilchen des neutralisierten Elektronengases

   $$a_1 \stackrel{!}{=} \epsilon_{bulk} = \frac{3}{5} k_F^2 + \epsilon_{xc}(r_s)$$

   handeln (siehe Abb. 3.2). Wie in den Jellium-Rechnungen selbst verwenden wir für ϵ_{xc} die von Vosko, Wilk und Nusair angegebene Parametrisierung [35].

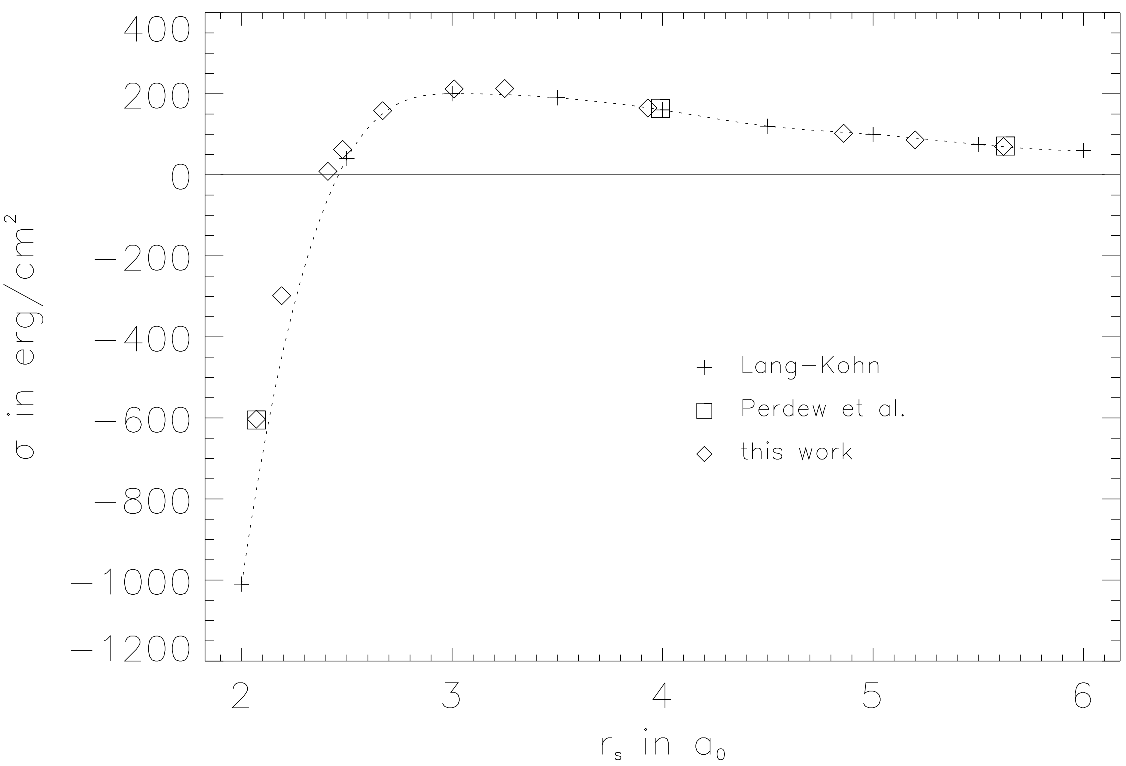


Abbildung 3.3: Oberflächenenergie für Jellium-Oberflächen.

2. Der Term der Ordnung $N^{2/3}$ gibt an, wie die Gesamtenergie von der Größe der Oberfläche (im Fall der Jellium-Kugel: $A = 4\pi r_s^2 N^{2/3}$) abhängt. Es besteht also ein Zusammenhang zwischen a_2 und der Oberflächenenergie σ:

$$\sigma = \frac{a_2}{4\pi r_s^2}$$

   In Abb. 3.3 vergleichen wir die Oberflächenenergien, die sich aus unserem Fit ergeben, mit denjenigen, welche Lang und Kohn [22] beziehungsweise Perdew et al. [36] angeben. Der Vergleich mit [22] ist nicht völlig gerechtfertigt, da dort ein anderes Austausch-Korrelations Funktional $E_{xc}[n]$ verwendet wurde.

Wie sich zeigt, liefert unser least-square Fit also die erwarteten Entwicklungskoeffizienten für $\bar{E}(N)$. Im weiteren betrachten wir nun gerade die Abweichungen der Gesamtenergie $E(N)$ von diesem mittleren Verlauf:

$$\tilde{E}(N) = E(N) - \bar{E}(N) \tag{3.3}$$

Die oszillierenden Anteile der Gesamtenergie, die sich so aus unseren Jellium-Rechnungen ergeben, sind in den Abb. 3.4 wiedergegeben. Wir interessieren uns insbesondere für die *Minima* in $\tilde{E}(N)$, welche besonders stabilen Clustern entsprechen. Die zugehörigen magischen Zahlen N sind in den Plots angegeben und zusätzlich in Tabelle 3.2 aufgeführt. Unsere Ergebnisse stimmen mit den in [39, 40] publizierten Resultaten für Natrium, Lithium und Aluminium überein.

Die Quantifizierung der Superschalen ist etwas komplizierter: Um die Knoten in $\tilde{E}(N)$ zu bestimmen, müssen wir die Minima in der *Amplitude der Schalenoszillationen* finden. Dazu bestimmen wir die Einhüllende von $\tilde{E}(N)$, indem wir die schnellen Schalenoszillationen mittels eines Tiefpasses aus dem Absolutbetrag $|\tilde{E}(N^{1/3})|$ herausfiltern. Die Lage der Minima dieser Einhüllenden definieren wir als Position der Superschalen-Knoten. Die so bestimmten Werte sind in Tabelle 3.3 zusammengestellt. Aufgrund der Filterung weisen sie eine Unschärfe $\Delta N^{1/3}$ in der Größenordnung der Schalenfrequenz auf. Wir wählen $\Delta N^{1/3} = \pm 0.2$ als typischen Fehlerbalken (vgl. Abb. 3.11).

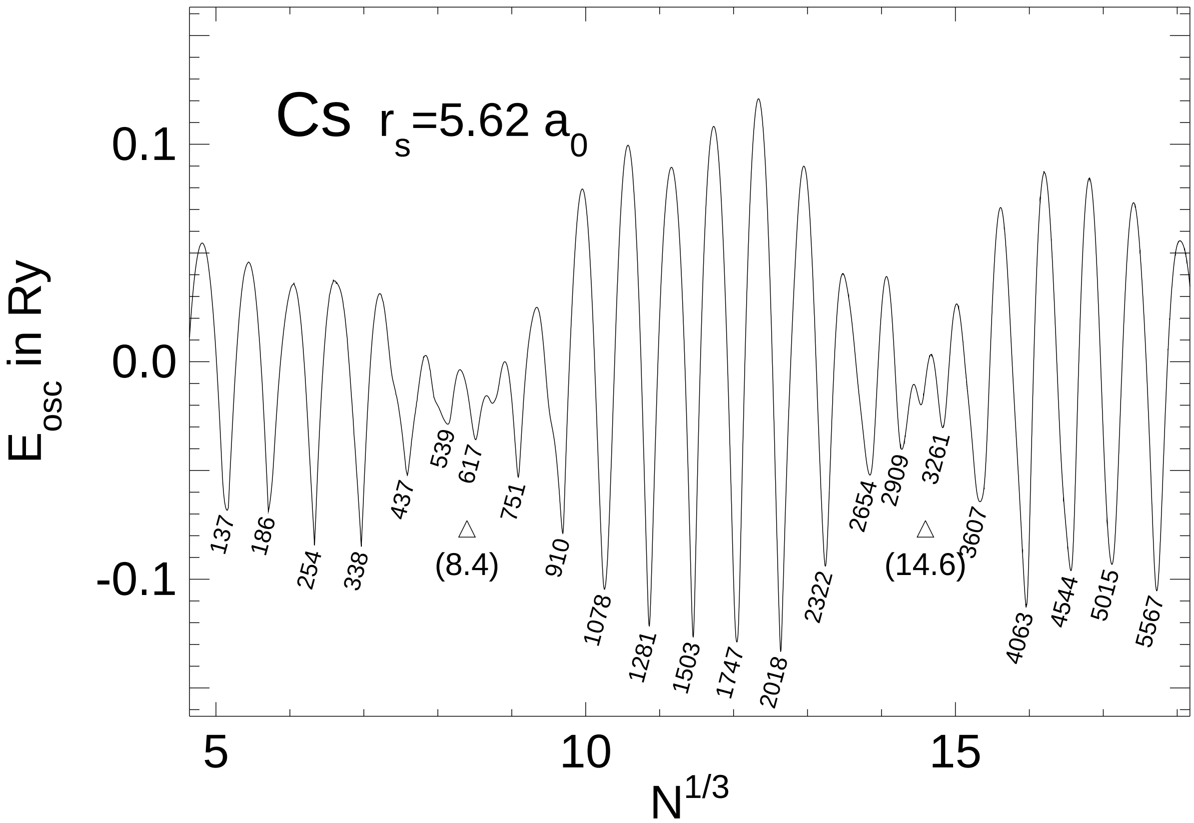
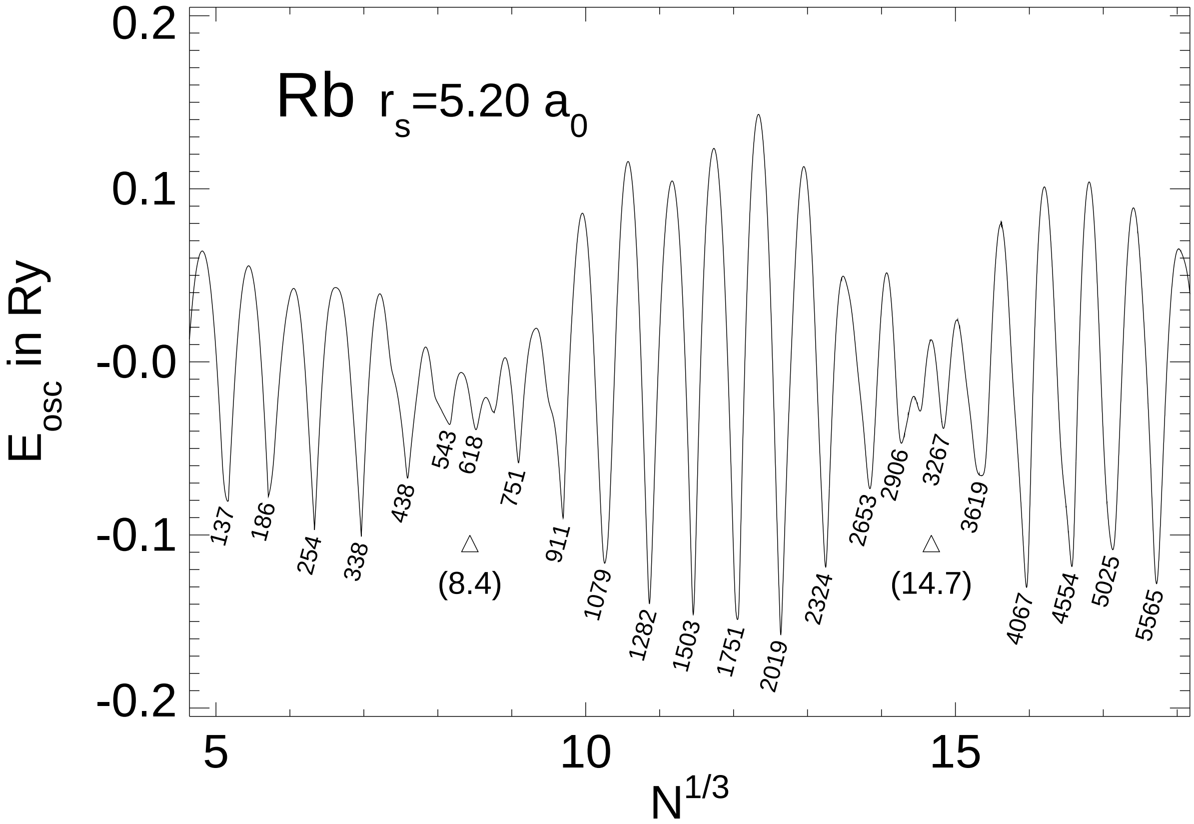
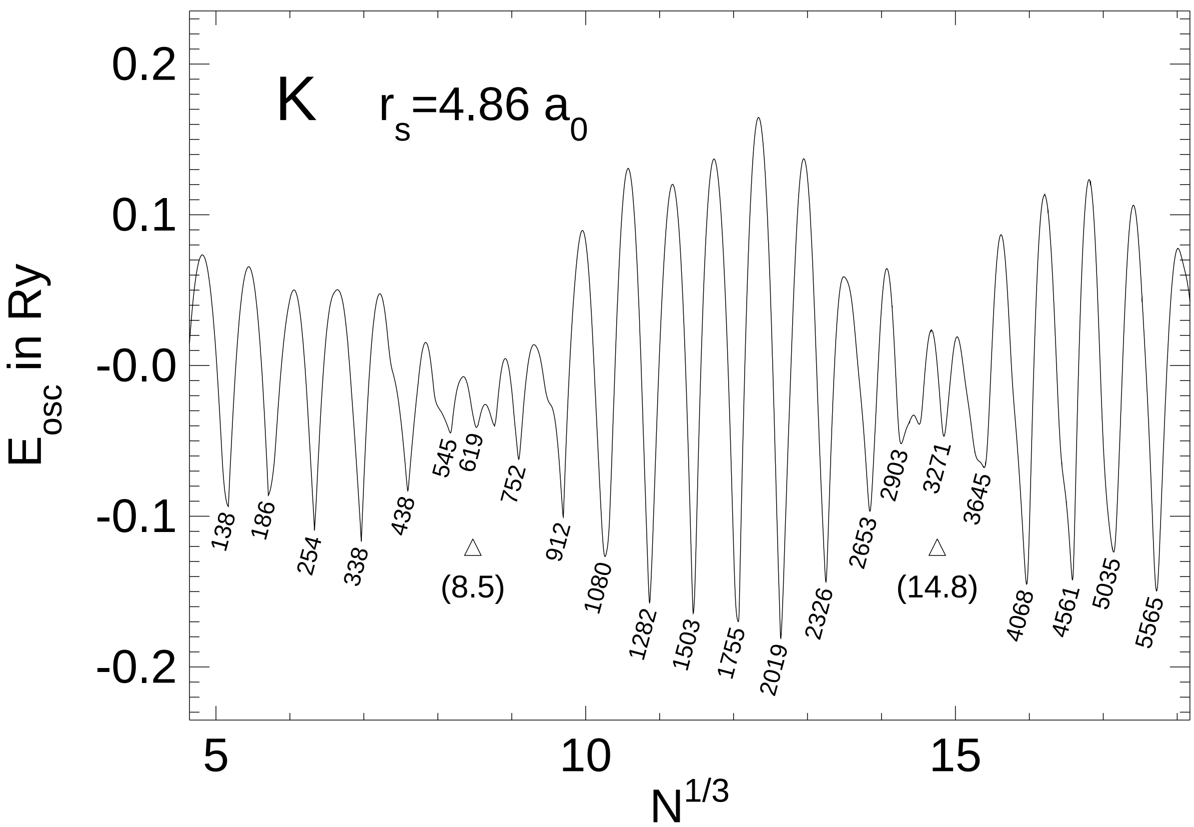


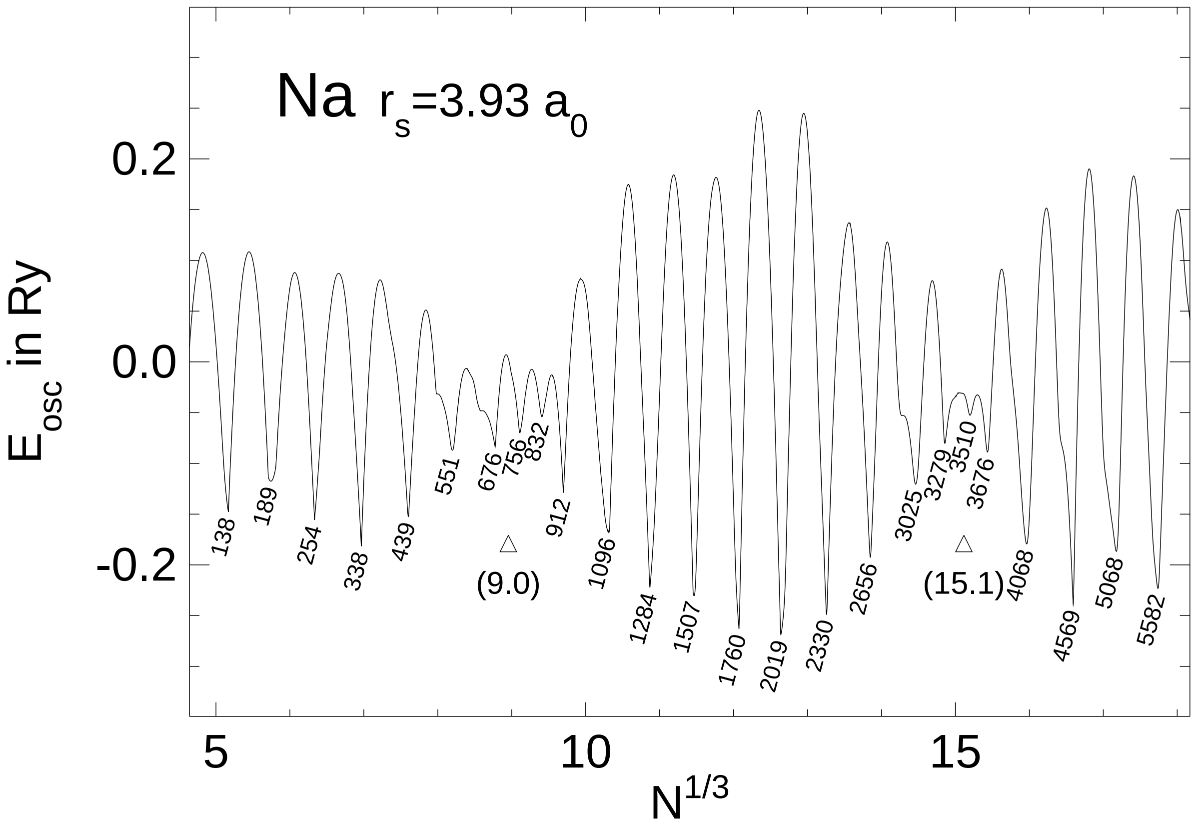
Abbildung 3.4: Oszillierender Anteil $\tilde{E}(N)$ der Gesamtenergie für Jellium Cluster. An den Minima ist die entsprechende Zahl der Valenzelektronen angegeben. Die Position der Superschalen-Knoten ist ebenfalls notiert (vgl. auch Tabellen 3.2 und 3.3).

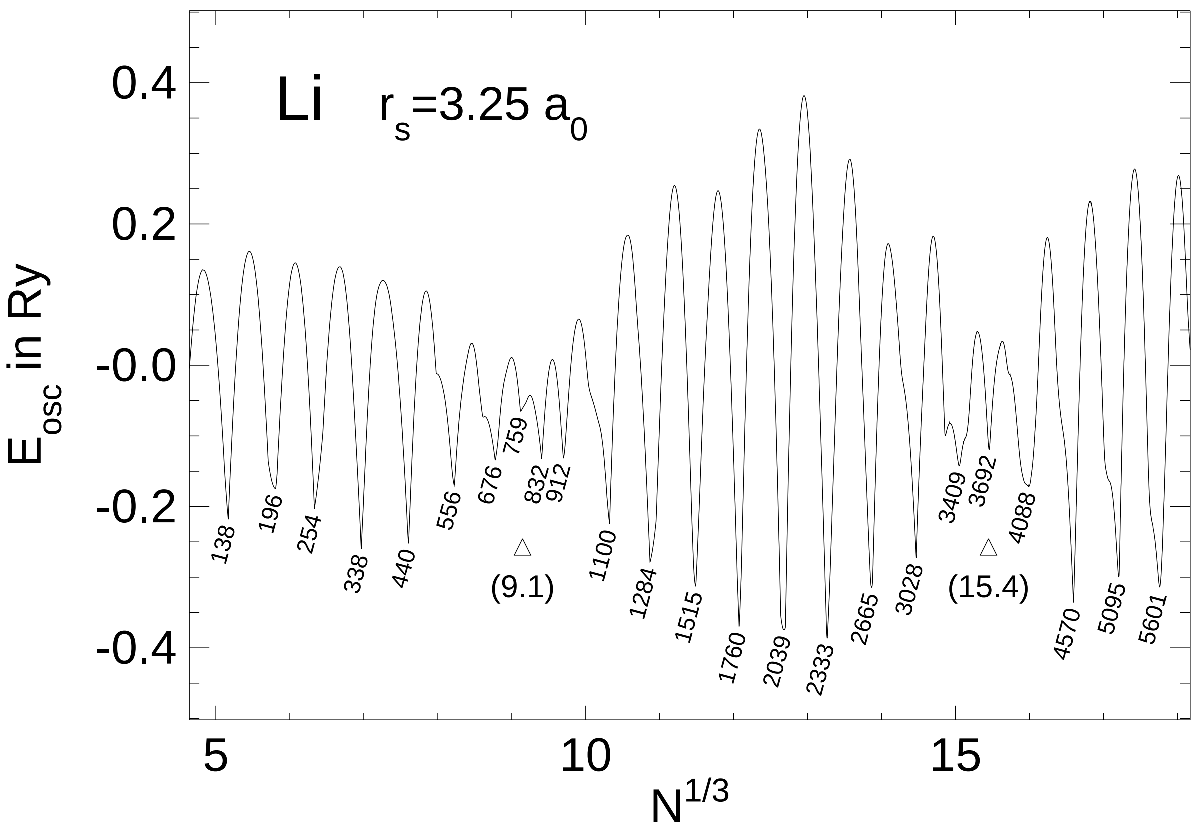


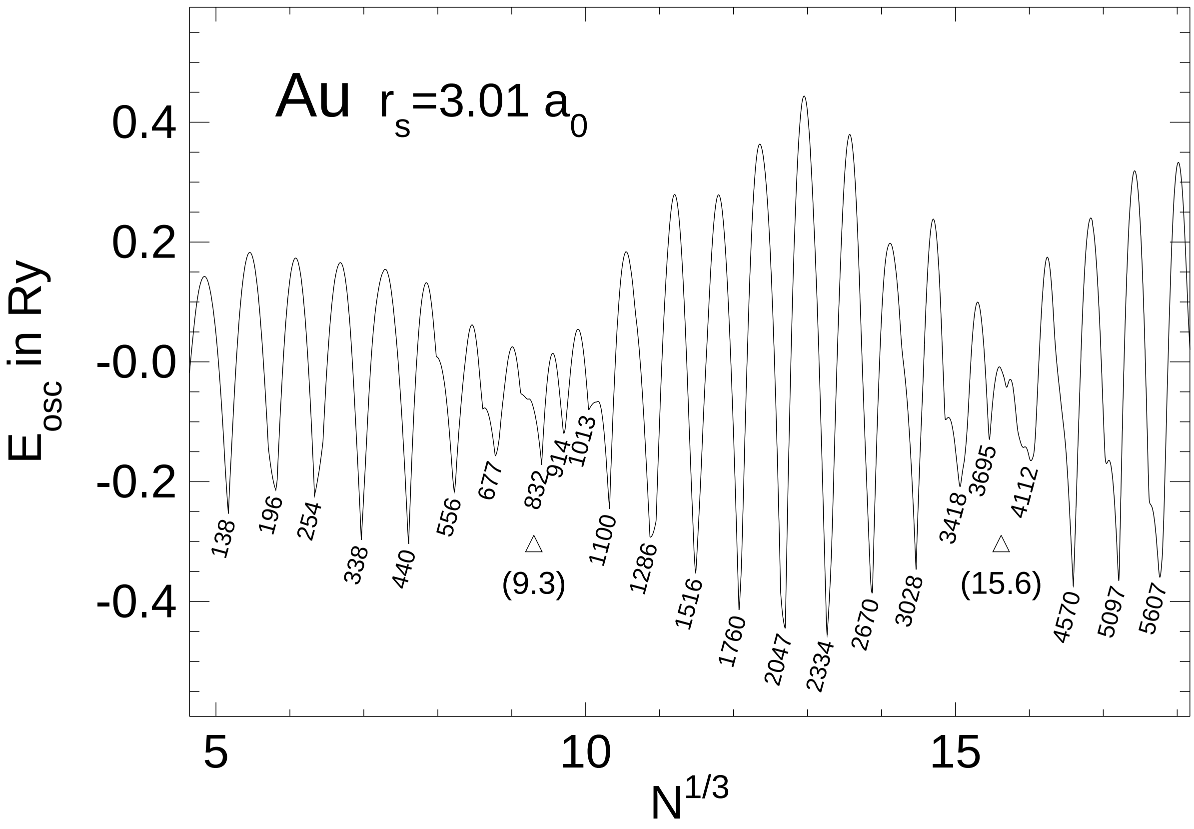
Rb r_s=5.20 a_0
E_{osc} in Ry
$N^{1/3}$
0.2
0.1
-0.0
-0.1
-0.2
5
10
15
137
186
254
338
438
543
618
751
911
1079
1282
1503
1751
2019
2324
2653
2906
3267
3619
4067
4554
5025
5565
(8.4)
(14.7)

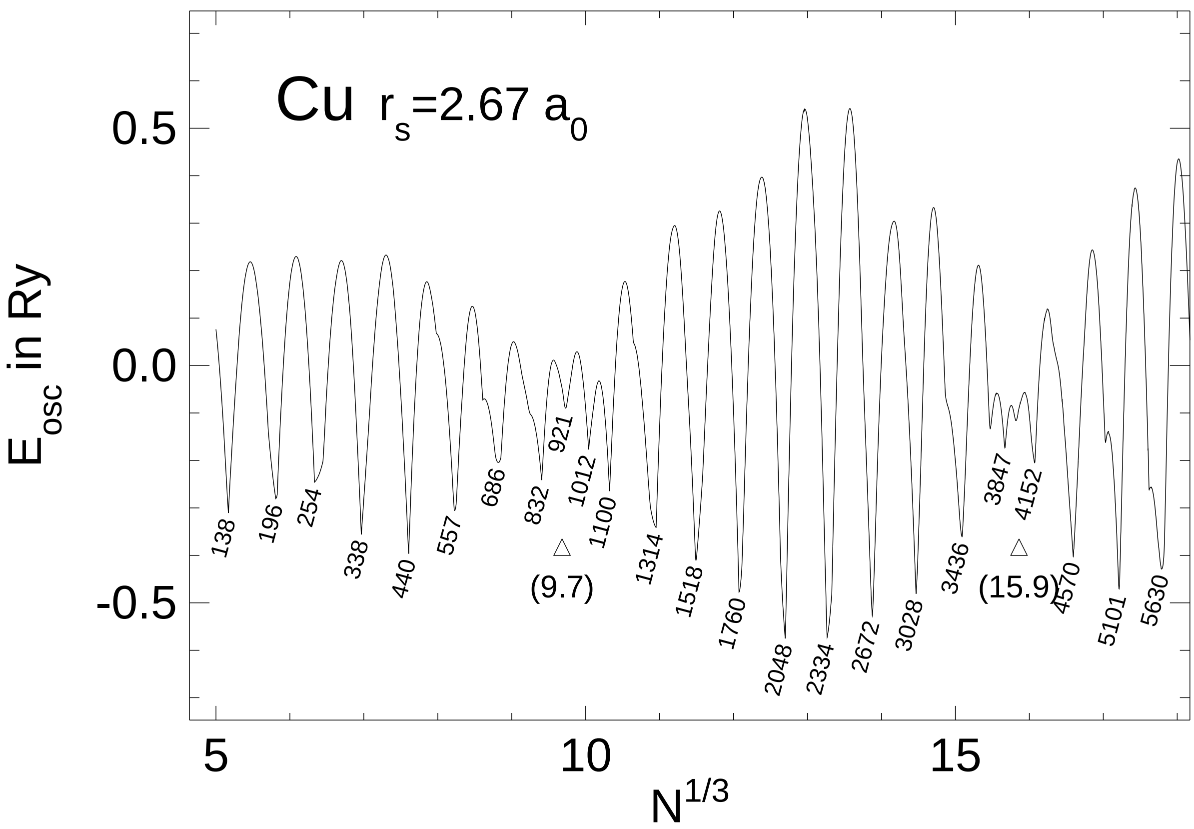


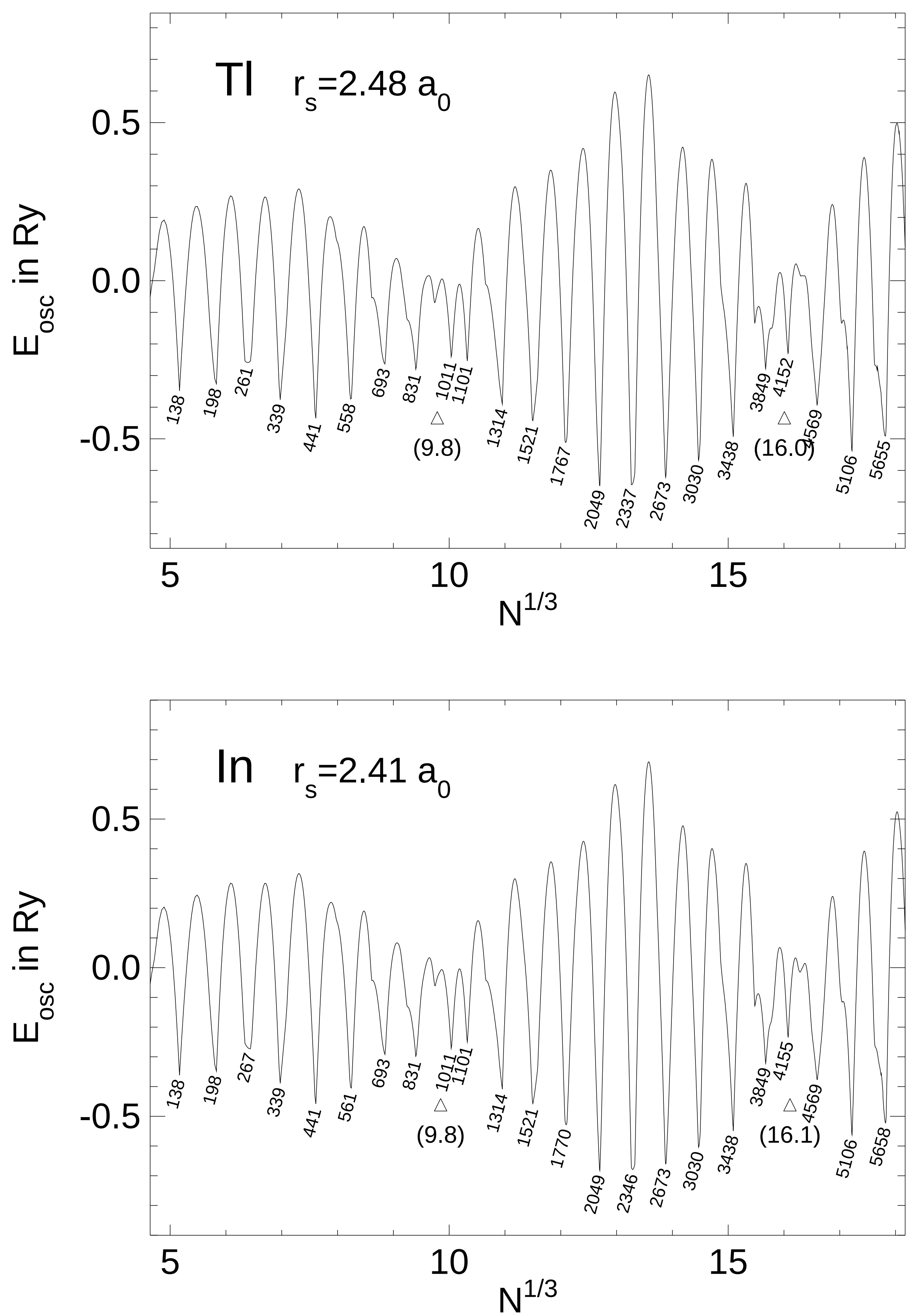
K r_s=4.86 a_0
E_{osc} in Ry
$N^{1/3}$
0.2
0.1
-0.0
-0.1
-0.2
5
10
15
138
186
254
338
438
545
619
752
912
1080
1282
1503
1755
2019
2326
2653
2903
3271
3645
4068
4561
5035
5565
(8.5)
(14.8)


Na r_s=3.93 a_0
E_{osc} in Ry
0.2
0.0
-0.2
5
10
15
$N^{1/3}$
138
189
254
338
439
551
676
756
832
912
1096
1284
1507
1760
2019
2330
2656
3025
3279
3510
3676
4068
4569
5068
5582
(9.0)
(15.1)

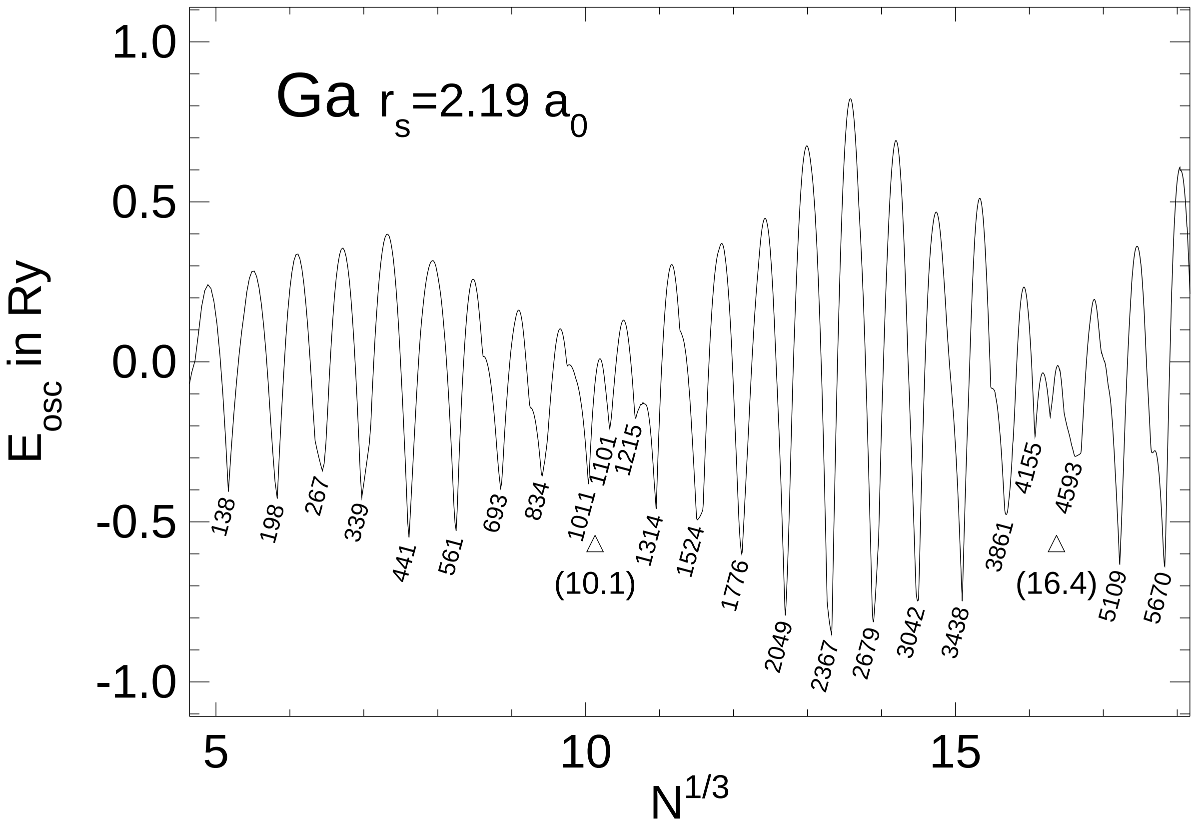

Li r_s=3.25 a_0
E_{osc} in Ry
0.4
0.2
-0.0
-0.2
-0.4
5
10
15
$N^{1/3}$
138
196
254
338
440
556
676
759
832
912
1100
1284
1515
1760
2039
2333
2665
3028
3409
3692
4088
4570
5095
5601
(9.1)
(15.4)

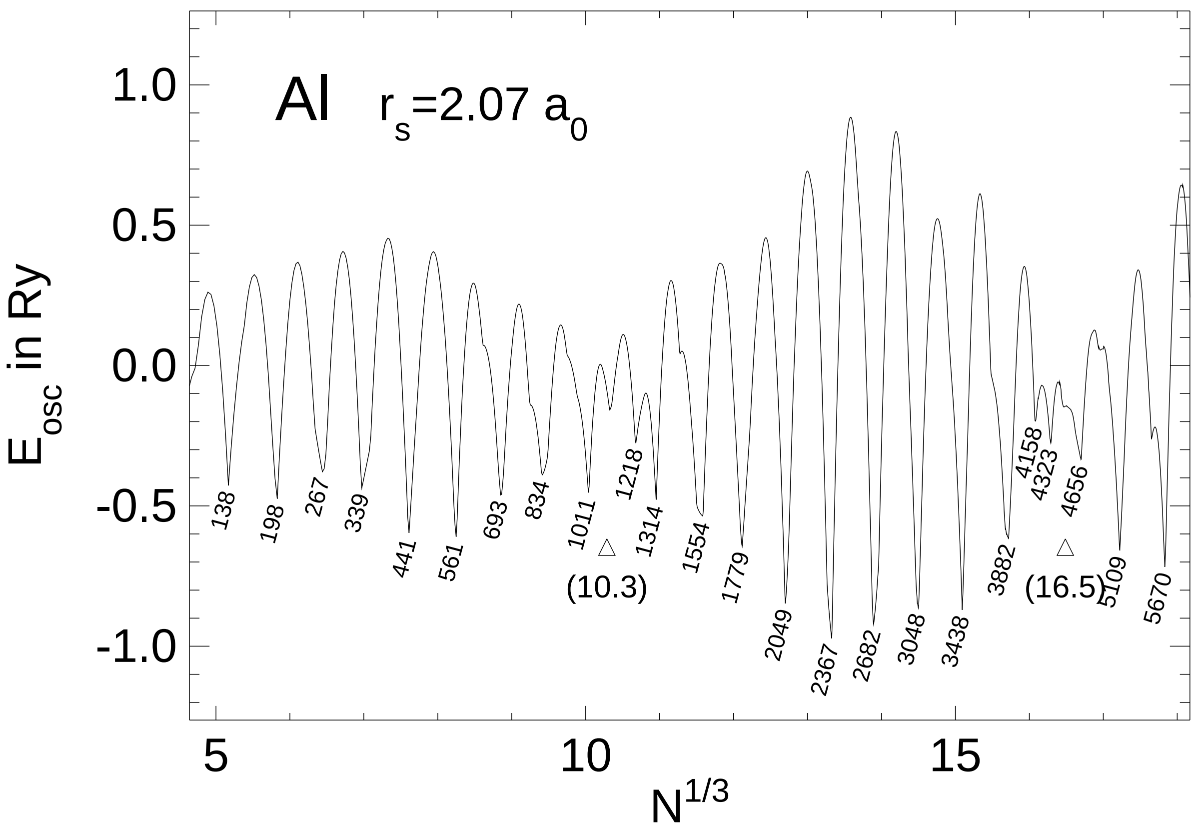

Au r_s=3.01 a_0
E_{osc} in Ry
$N^{1/3}$
138
196
254
338
440
556
677
832
914
1013
1100
1286
1516
1760
2047
2334
2670
3028
3418
3695
4112
4570
5097
5607
(9.3)
(15.6)


Cu r_s=2.67 a_0
E_{osc} in Ry
$N^{1/3}$
138
196
254
338
440
557
686
832
921
1012
1100
1314
1518
1760
2048
2334
2672
3028
3436
3847
4152
4570
5101
5630
(9.7)
(15.9)



Tl
r_s=2.48 a_0
E_{osc} in Ry
0.5
0.0
-0.5
5
10
15
$N^{1/3}$
138
198
261
339
441
558
693
831
1011
1101
1314
1521
1767
2049
2337
2673
3030
3438
3849
4152
4569
5106
5655
(9.8)
(16.0)
In
r_s=2.41 a_0
E_{osc} in Ry
0.5
0.0
-0.5
5
10
15
$N^{1/3}$
138
198
267
339
441
561
693
831
1011
1101
1314
1521
1770
2049
2346
2673
3030
3438
3849
4155
4569
5106
5658
(9.8)
(16.1)


Ga r_s=2.19 a_0
E_osc in Ry
1.0
0.5
0.0
-0.5
-1.0
5
10
15
N^1/3
138
198
267
339
441
561
693
834
1011
1101
1215
1314
1524
1776
2049
2367
2679
3042
3438
3861
4155
4593
5109
5670
(10.1)
(16.4)


Al r_s=2.07 a_0
E_osc in Ry
1.0
0.5
0.0
-0.5
-1.0
5
10
15
N^1/3
138
198
267
339
441
561
693
834
1011
1218
1314
1554
1779
2049
2367
2682
3048
3438
3882
4158
4323
4656
5109
5670
(10.3)
(16.5)

Cs	Rb	K	Na	Li	Au	Cu	Tl	In	Ga	Al
137	137	138	138	138	138	138	138	138	138	138
186	186	186	189	196	196	196	198	198	198	198
254	254	254	254	254	254	254	261	267	267	267
338	338	338	338	338	338	338	339	339	339	339
437	438	438	439	440	440	440	441	441	441	441
539	543	545	551	556	556	557	558	561	561	561
617	618	619	634	640	638	638	639	639	639	
668	673	674	676	676	677	686	693	693	693	693
751	751	752	756	759	783					
			832	832	832	832	831	831	834	834
910	911	912	912	912	914	921	924	927	927	
					1013	1012	1011	1011	1011	1011
1078	1079	1080	1096	1100	1100	1100	1101	1101	1101	1101
									1215	1218
1281	1282	1282	1284	1284	1286	1314	1314	1314	1314	1314
1503	1503	1503	1507	1515	1516	1518	1521	1521	1524	1554
1747	1751	1755	1760	1760	1760	1760	1767	1770	1776	1779
2018	2019	2019	2019	2039	2047	2048	2049	2049	2049	2049
2322	2324	2326	2330	2333	2334	2334	2337	2346	2367	2367
2654	2653	2653	2656	2665	2670	2672	2673	2673	2679	2682
2909	2906	2903	2913							
3070	3063	3056	3025	3028	3028	3028	3030	3030	3042	3048
3261	3267	3271	3279	3283	3288					
				3409	3418	3436	3438	3438	3438	3438
			3510							
3607	3619	3645	3676	3692	3695		3708	3708		
					3865	3847	3849	3849	3861	3882
4063	4067	4068	4068	4088	4112	4152	4152	4155	4155	4158
							4332	4320	4317	4323
4544	4554	4561	4569	4570	4570	4570	4569	4569	4593	4656
5015	5025	5035	5068	5095	5097	5101	5106	5106	5109	5109
						5471			5511	5502
5567	5565	5565	5582	5601	5607	5630	5655	5658	5670	5670

Tabelle 3.2: Position der Schalen-Minima (magische Zahlen) für Jellium-Cluster. Angegeben sind nicht die Anzahl der Atome im Cluster, sondern die Zahl der Valenzelektronen.

	Cs	Rb	K	Na	Li	Au	Cu	Tl	In	Ga	Al
$N_1^{1/3}$	8.39	8.43	8.47	8.95	9.15	9.30	9.68	9.79	9.85	10.13	10.29
$N_2^{1/3}$	14.59	14.67	14.75	15.11	15.45	15.62	15.86	16.01	16.11	16.37	16.49

Tabelle 3.3: Position der Superschalen-Knoten für Jellium-Cluster. N bezeichnet die Zahl der Valenzelektronen.

3.1 Mikroskopische Betrachtung

Testen wir nun die Überlegung aus Kapitel 1, wonach der oszillierende Anteil $\tilde{E}(N)$ der Gesamtenergie auf die (Fast-)Entartung von Subschalen zurückzuführen ist. Da die Besetzungen in unseren Rechnungen gemäß der Fermi-Dirac-Verteilung

$$N_{\varepsilon_{n,l}} = \frac{2(2l+1)}{1+e^{(\varepsilon_{n,l}-E_F)/kT}}$$

erfolgen, werden (fast-)entartete[1] Energieniveaus gleichzeitig besetzt. Es bietet sich daher an, die Auffüllung der $2(2l+1)$-fach entarteten Energieniveaus mit wachsender Zahl von Valenzelektronen N zu untersuchen.

Abb. 3.5 zeigt die Änderung in der Besetzungszahl N_l von Energieniveaus mit Drehimpuls l als Funktion der Cluster-Größe $N^{1/3}$. Für festes l (horizontale Linien) erkennt man an der Abfolge der kleinen „Höcker" deutlich die sukzessive Besetzung von Energieniveaus mit wachsender Knoten-Quantenzahl $n = 0, 1, 2, \ldots$ Darüber hinaus sieht man, daß sich die Höcker mit gegebenem n zu Linien anordnen. Das wird verständlich, wenn man sich daran erinnert, daß $N^{1/3}$ den Cluster-Radius R_0 mißt und daß die Fermi-Energie $p_F^2/2m$ in nullter Näherung konstant ist: Der maximale klassische Drehimpuls eines Elektrons im Cluster ist dann durch

$$L_{max}(N) = p_F\, R_0 \tag{3.4}$$

gegeben; d.h. der Maximalwert der Drehimpulsquantenzahl sollte in nullter Näherung proportional zu $N^{1/3}$ sein. Die n-Abhängigkeit der „Besetzungslinien" läßt sich mit Hilfe der Bohr-Sommerfeldschen Quantisierungsbedingung für eine sphärische Kavität vom Ra-

[1] Die relevante Energieskala, um zu beurteilen, ob zwei Energieniveaus fast entartet sind, ist dabei natürlich kT

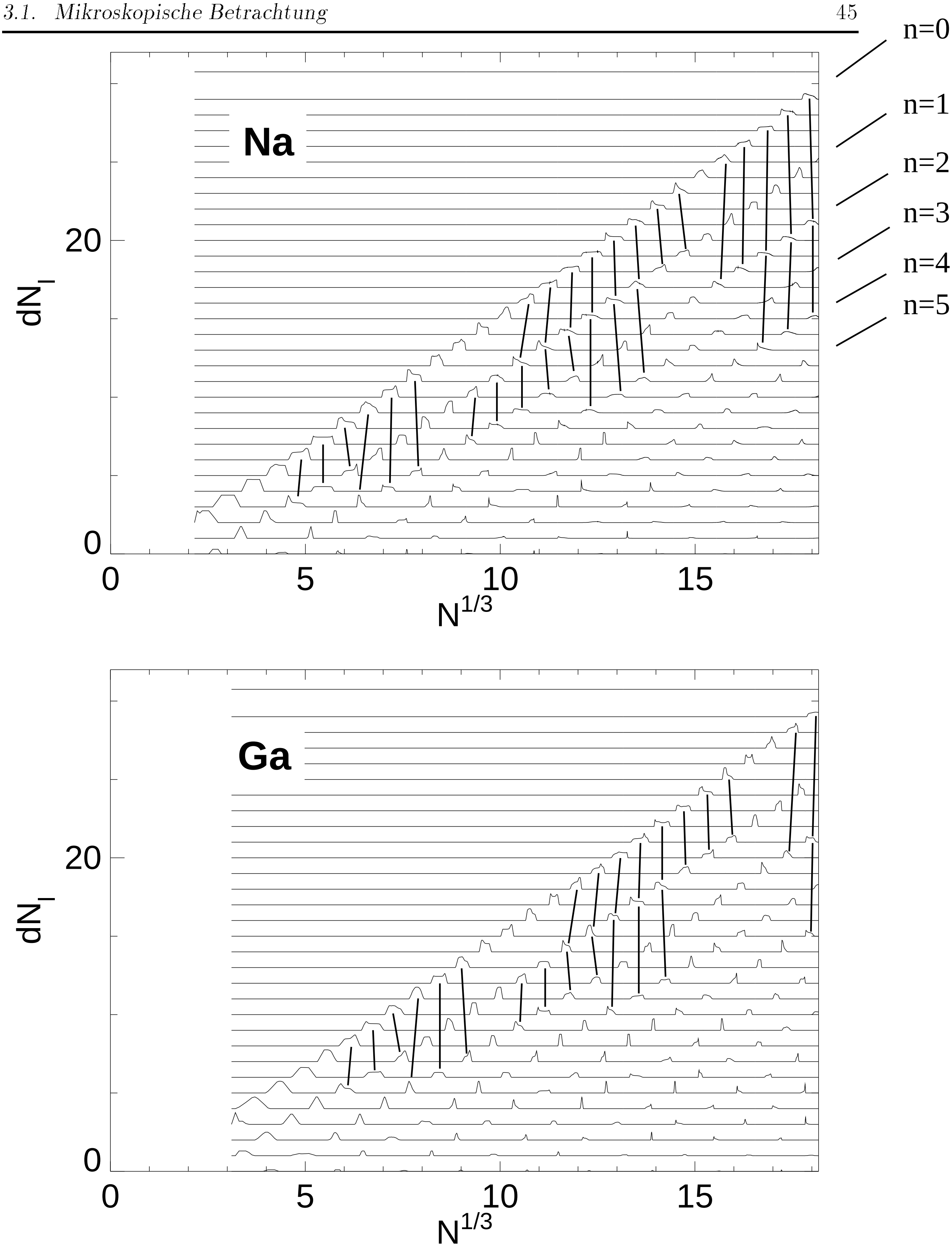


Abbildung 3.5: Besetzung der Energieniveaus mit wachsender Clustergröße. Auf jeder horizontalen Linie l sind die Änderungen in der Besetzungszahl N_l von Energieniveaus mit Drehimpuls l als Funktion der Zahl an Valenzelektronen N angegeben. Zustände, die gleichzeitig besetzt werden, sind markiert.

dius R_0 [41]

$$\left(l+\frac{1}{2}\right)\left(\sqrt{\frac{1}{\gamma^2}-1}-\arccos(\gamma)\right)=\pi\left(n+3/4\right) \qquad \text{mit} \;\; \gamma=\frac{l+1/2}{k_F R_0} \tag{3.5}$$

verstehen. Wegen (3.4) können wir die Quantisierungsbedingung um $\gamma = 1$ entwickeln. In nullter Ordnung ergibt sich dann (3.4), in erster Ordnung finden wir:

$$l+\frac{1}{2}\approx k_F R_0-\frac{\left(3\pi(n+3/4)\right)^{2/3}}{2}\,(k_F R_0)^{1/3} \tag{3.6}$$

Die Qualität der Näherung für $n \ll l$ läßt sich aus dem Vergleich des Ausdrucks (3.6) mit den quantenmechanischen Eigenwerten der sphärischen Kavität ersehen:

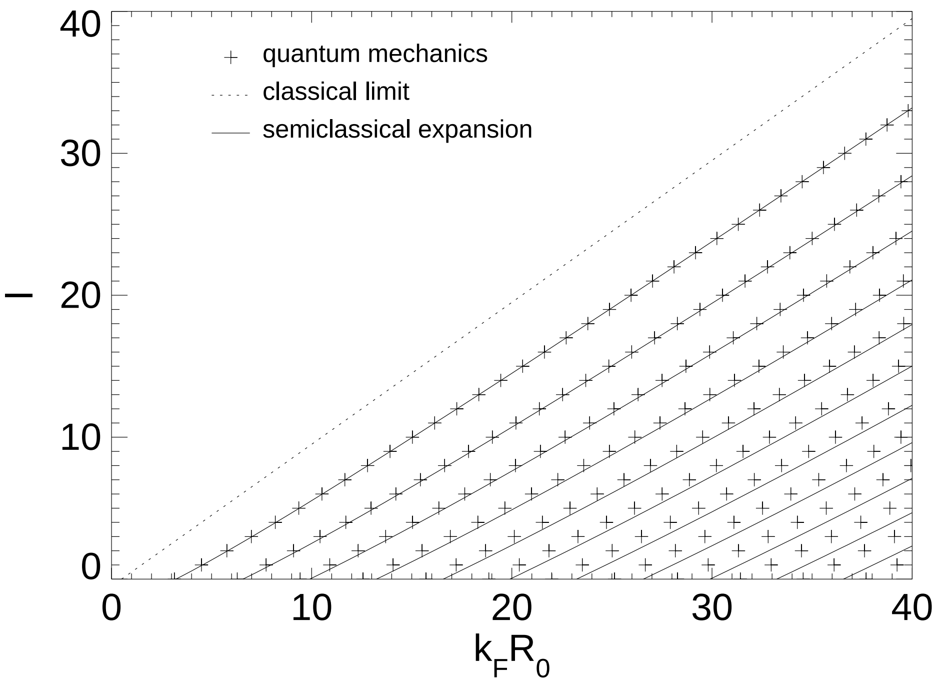


Abbildung 3.6: Vergleich der quantenmechanischen Eigenzustände mit der semiklassischen Entwicklung (3.6)

Sieht man von der Variation der Fermi-Energie mit der Cluster-Größe ab

$$k_F R_0 \approx \left(\frac{9\pi}{4}\right)^{1/3} N^{1/3}$$

so kann man die Kreuze in Abb. 3.6 mit den Höckern in Abb. 3.5 identifizieren: Jeder Zustand, der an der Fermi-Energie liegt, wird auch besetzt. Man erkennt, daß die Steigung der Besetzungslinien mit wachsender Knotenzahl n sinkt, d.h. daß zum Beispiel die $n = 0$ Niveaus im Vergleich zu den $n = 1$ Zuständen schneller aufgefüllt werden. Mit wachsendem Cluster-Radius sind daher die $n = 0$ und $n = 1$ Zustände periodisch miteinander entartet. Bereiche, in denen solche Entartungen auftreten, sind in Abb. 3.5 markiert: Zunächst sind die $n = 0$ und $n = 1$ Niveaus mit $\Delta l = 3$ entartet[2]. Mit wachsender Cluster-Größe „überholen" die $n = 1$-Zustände die $n = 0$-Niveaus. Die Entartung verschwindet, um schließlich als $\Delta l = 4$-Entartung wieder aufzutauchen[3]. Dieser Prozeß setzt sich immer weiter fort und tritt auch für die anderen n auf. Wie erwartet ist die Amplitude von $\tilde{E}(N)$ genau dort minimal, wo sich gerade keine entarteten Niveaus finden; und sie wird genau dort besonders groß, wo Niveaus mit kleinem n (also großem Gewicht $2(2l + 1)$) miteinander entartet sind. So führt die Entartung von $n = 0, 1$-Niveaus mit $\Delta l = 3$, gefolgt von $n = 0, 2$ mit $\Delta l = 6$ zum ersten „Schwebungs-Bauch" von $\tilde{E}(N)$ in der Gegend von $N^{1/3} \approx 6$. Der nächste Bauch, der etwa bei $N^{1/3} \approx 13$ liegt, wird durch ein komplizierteres Entartungsmuster mit $\Delta l = 3, 4$ und 6 verursacht. Es fällt auf, daß die Entartungsmuster in 3.5 praktisch unabhängig vom betrachteten Jellium sind, außer daß sie für verschiedene r_s auf der $N^{1/3}$-Skala leicht gegeneinander verschoben sind.

3.2 Skalenanalyse

Wir wollen nun die Abhängigkeit der Schalen und Superschalen vom Jellium-Parameter r_s untersuchen. Ein solcher Vergleich der physikalischen Eigenschaften verschiedener gleichartiger Systeme wird im allgemeinen dann besonders übersichtlich, wenn man *reduzierte Größen* vergleicht. Dazu muß man natürlich die charakteristischen Skalen für die betrachteten Systeme identifizieren.

Offensichtlich definiert der Wigner-Seitz Radius die natürliche Längenskala für ein Jellium-Cluster. Es bietet sich daher an, die Kohn-Sham-Gleichung für das Cluster in Einheiten von r_s zu schreiben und dadurch dimensionslos zu machen:

$$-\Delta\Psi(\vec{x}) + r_s^2\Big(V(\vec{x}) - E\Big)\Psi(\vec{x}) = 0 \qquad , \ \vec{x} = \vec{r}/r_s \tag{3.7}$$

Wir lesen daraus ab, daß $1/r_s^2$ eine charakteristische Energieskala definiert. Wir können

[2] Das ist die $3n + l$-Entartung aus Kapitel 1.

[3] $4n + l$-Entartung

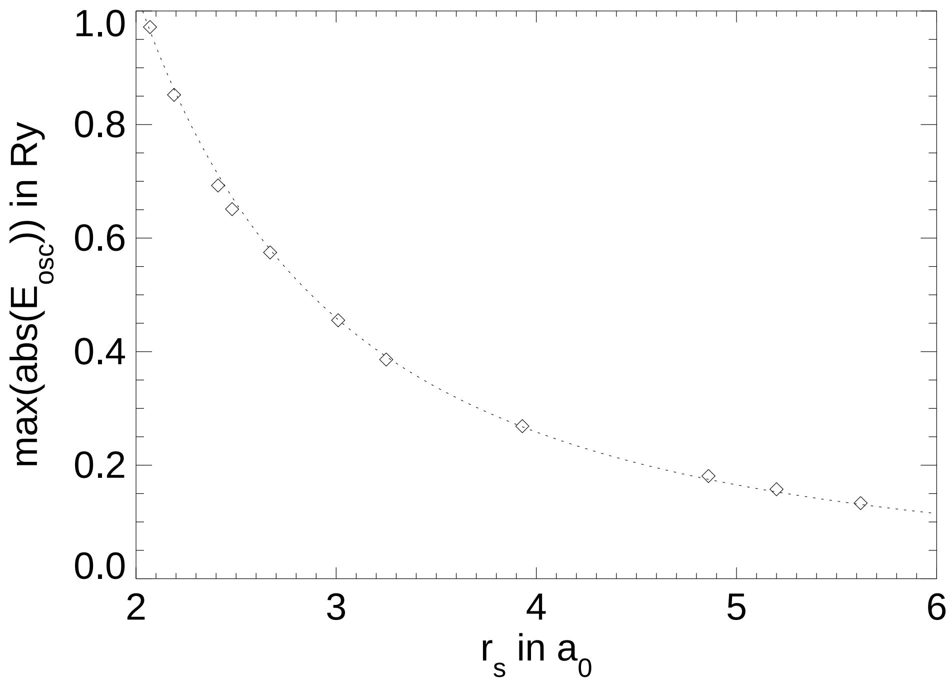


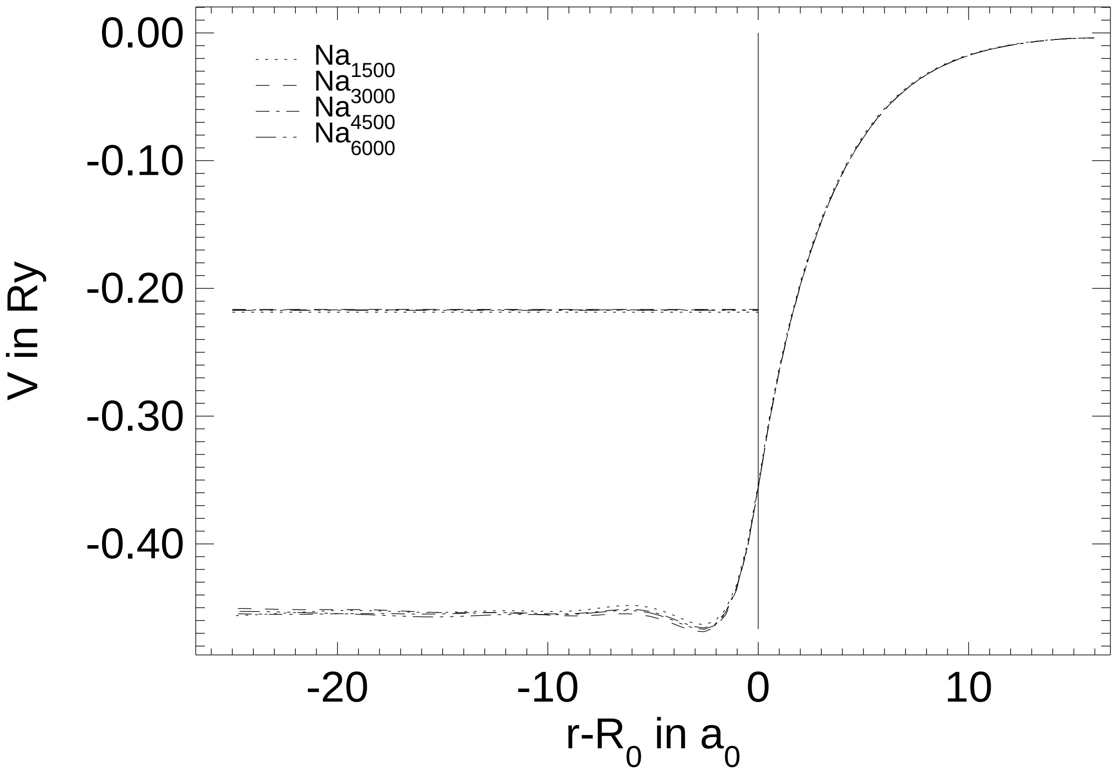
Abbildung 3.7: Skalierung der Amplitude von $\tilde{E}(N)$ mit r_s. Die Punkte geben die aus $\tilde{E}(N)$ ermittelten maximalen Amplituden wieder, die Kurve zeigt einen Fit der Form $const/r_s^2$.

daher vermuten, daß für die Amplitude des oszillierenden Teils der Gesamtenergie gilt:

$$\tilde{E}(r_s; N) \propto \frac{1}{r_s^2}$$

Um diese Vermutung zu überprüfen, bestimmen wir die maximale Amplitude für jedes $\tilde{E}(r_s; N)$ und tragen sie über r_s auf (Abb. 3.4). Wie sich zeigt, skalieren diese Energien tatsächlich wie $1/r_s$.

Wenden wir uns nun der Form der Kohn-Sham-Potentiale zu. Für gegebenen Wigner-Seitz Radius skaliert die Ausdehnung der Potentiale offensichtlich mit der Cluster-Größe $R_0 = r_s N^{1/3}$. Um die Potentialform verschieden großer Cluster miteinander zu vergleichen, bietet es sich an, die Potentiale so übereinander zu legen, daß die jeweiligen Jellium-Kanten aufeinander fallen (vgl. Abb. 3.8). Dabei erkennen wir, daß die Form der Potentiale — abgesehen von leichten Oszillationen im Cluster-Inneren — praktisch unabhängig von der Cluster-Größe ist. Wir können die Potentiale daher grob durch *zwei Längenskalen* charakterisieren: den Wigner-Seitz Radius, der bei gegebener Zahl von Valenzelektronen N die Ausdehnung des Potentials bestimmt, und die typische Breite des



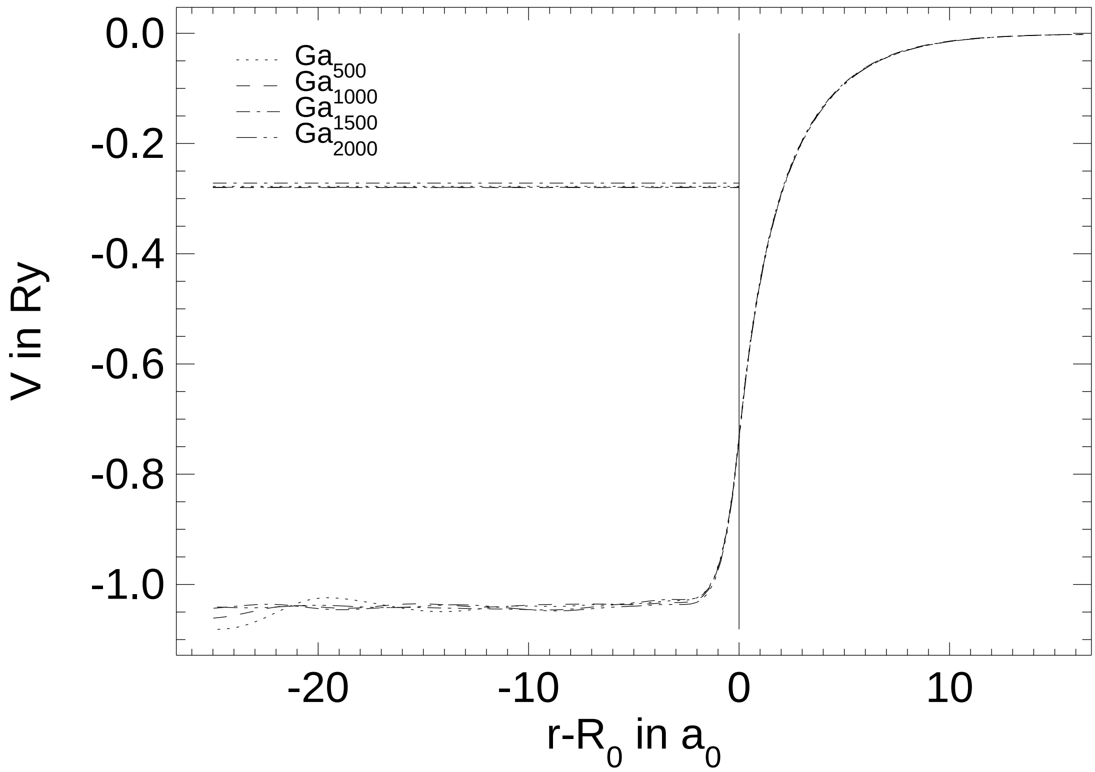


Abbildung 3.8: Vergleich der selbstkonsistenten Potentiale für Jellium-Cluster verschiedener Größe. Als Nullpunkt wurde jeweils der Jellium-Rand gewählt.

Potential-Randes a. Es ist daher anzunehmen, daß die dimensionslose Zahl a/r_s (nennen wir sie „Cluster-Konstante“) eine charakteristische Größe für ein Jellium-Cluster ist. Cluster mit vergleichbarer Cluster-Konstante sollten demnach ähnliche Eigenschaften besitzen. Es liegt also nahe, die interessierenden Größen (hier die Position der Schalen-Minima bzw. Superschalen-Knoten) über a/r_s aufzutragen.

Nun kennen wir die Ausdehnung a der Randschicht der Cluster-Potentiale jedoch nicht explizit. Ein Vergleich der Potentiale für Na ($r_s = 3.93\,a_0$) bzw. Ga ($r_s = 2.07\,a_0$) Cluster läßt jedoch schon vermuten, daß $a(r_s)$ kaum mit r_s variiert. Um die Abhängigkeit der Randdicke a von r_s abzuschätzen, betrachten wir ein einfaches Thomas-Fermi Modell einer ebenen Jellium-Oberfläche $n_I(z) = n_I\,\Theta(-z)$. Dazu minimieren wir das Oberflächenenergie-Funktional

$$\sigma[n(z)] = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \Big(\epsilon(n(z))\,n(z) - \epsilon(n_I(z))\,n_I(z)\Big)\,dz}{A} \tag{3.8}$$

wobei $\epsilon(n)$ die kinetische Energie in Thomas-Fermi Näherung mit Kirzhnits-Gradienten-

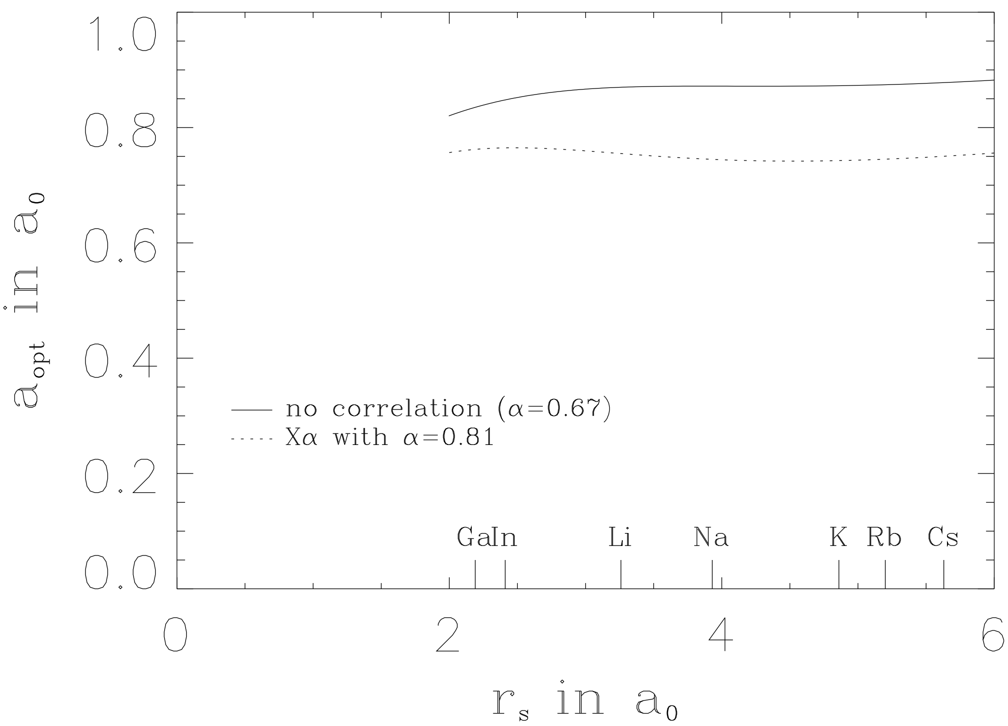


Abbildung 3.9: Oberflächen-Weite a als Funktion der Jellium-Dichte r_s. Thomas-Fermi Rechnung mit Gradientenkorrektur für eine parametrisierte Elektronendichte.

korrektur [42], die Austauschenergie (evtl. Korrelation in Slaters X_α-Näherung [43]) sowie die Coulomb Energie der Ladungen enthält.

Um die Rechnung möglichst einfach zu halten, betrachten wir nur parametrisierte Elektronendichten. Dabei lassen wir nur einen Parameter zu: die gesuchte Längenskala a der Randschicht.

$$n(z) = n_I \, f(z/a) \text{ und } n_I(z) = n_I \, \Theta(-z) \tag{3.9}$$

Dann läßt sich der Parameter a aus allen Integralen in (3.8) heraustransformieren und die Variationsgleichung wird quadratisch in a. Wählen wir für die Elektronendichte die Parametrisierung [44]

$$f(z) = \begin{cases} 1 - \frac{1}{2}e^{z} & , z < 0 \\ \frac{1}{2}e^{-z} & , z \geq 0 \end{cases}$$

so finden wir, *daß der Parameter a, der $\sigma[n]$ minimiert praktisch unabhängig von r_s ist,*

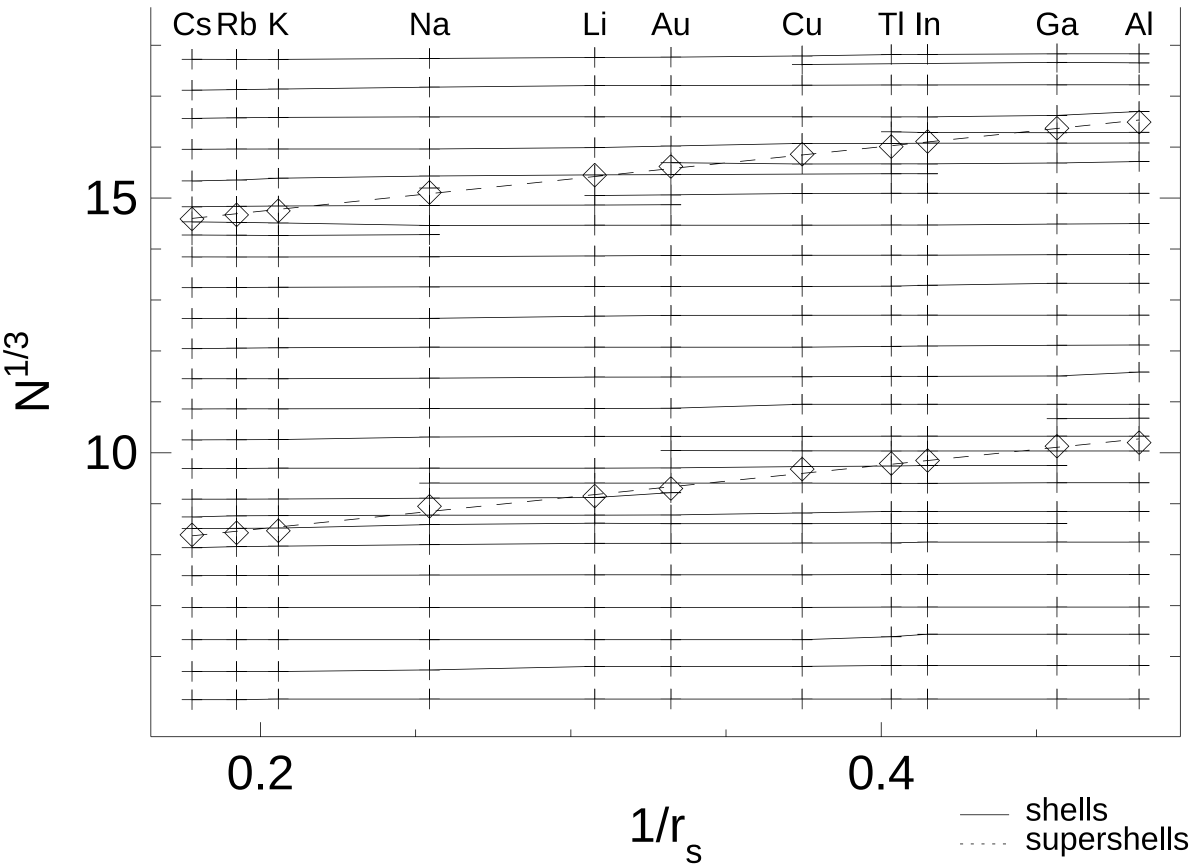


Abbildung 3.10: Position der Schalen-Minima (korrespondierende Schalen-Minima verschiedener Cluster sind mit durchgezogenen Linien verbunden) und der Superschalen-Knoten (durch gestrichelte Linien verbunden) als Funktion des Skalenparameters $1/r_s$

d.h.:

$$\boxed{\frac{a}{r_s} \quad \propto \quad \frac{1}{r_s}} \tag{3.10}$$

Daran ändert auch die Berücksichtigung der Korrelation in X_α Näherung nichts (vgl. Abb. 3.9). Andere Parametrisierungen der Elektronendichte liefern qualitativ gleiche Resultate.

Wegen (3.10) brauchen wir a also nicht explizit zu kennen, um die gewünschte Auftragung der Schalen- und Superschalen Positionen über der Cluster-Konstante a/r_s anfertigen zu können. Das Resultat unserer Analyse ist erstaunlich einfach (Abb. 3.10 und 3.11):

Die magischen Zahlen sind praktisch unabhängig vom Wigner-Seitz Radius; die Superschalen werden linear in $1/r_s$ verschoben.

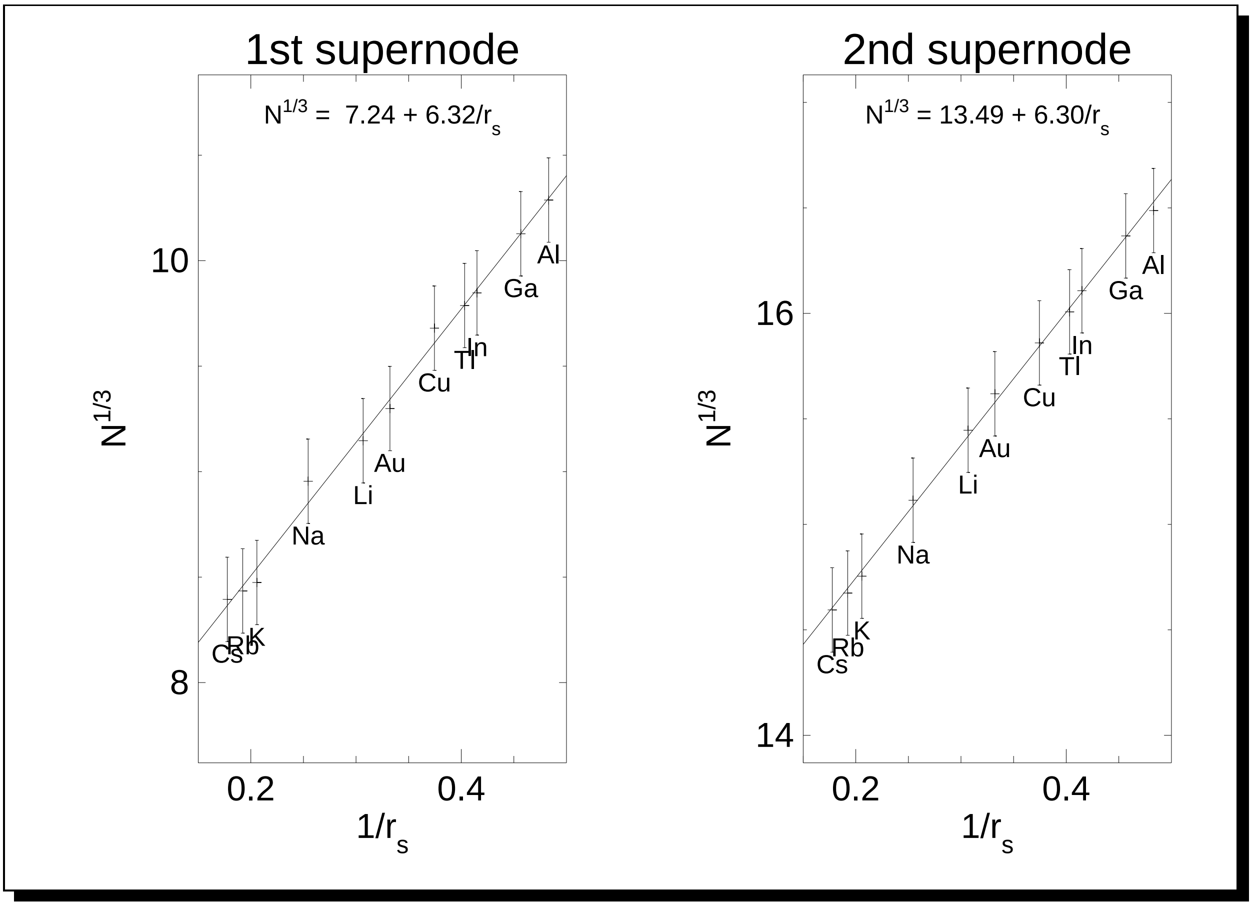


Abbildung 3.11: Position des ersten bzw. zweiten Superschalen-Knotens als Funktion von $1/r_s$ für verschiedene Jellium-Cluster. Die durchgezogene Linie zeigt eine aus den Daten gewonnene Ausgleichsgerade, deren Parameter im jeweiligen Plot angegeben sind.

Wir können diese Beobachtung interpretieren, wenn wir den oszillierenden Anteil der Gesamtenergie (siehe Abb. 3.4) als Schwebungsfigur

$$\begin{aligned}\tilde{E}(N) &= \cos\left(f_1 N^{1/3} - \varphi_1\right) + \cos\left(f_2 N^{1/3} - \varphi_2\right) \\ &= 2\ \underbrace{\cos\left(\frac{f_1 - f_2}{2} N^{1/3} - \frac{\varphi_1 - \varphi_2}{2}\right)}_{\text{Superschalen}}\ \underbrace{\cos\left(\frac{f_1 + f_2}{2} N^{1/3} - \frac{\varphi_1 + \varphi_2}{2}\right)}_{\text{Schalen}}\end{aligned} \tag{3.11}$$

beschreiben. Die Position des n-ten Schalen-Minimums ist dann durch

$$N_n^{1/3} = \frac{2(2n+1)\pi}{f_1 + f_2} + \frac{\varphi_1 + \varphi_2}{f_1 + f_2} \tag{3.12}$$

diejenige des k-ten Superschalen-Knotens durch

$$N_k^{1/3} = \frac{(2k+1)\pi}{f_1 - f_2} + \frac{\varphi_1 - \varphi_2}{f_1 - f_2} \tag{3.13}$$

gegeben. Da wir praktisch keine Änderungen der Schalen bzw. Superschalen-„Frequenzen“ (d.h. der Abstände zwischen den Minima) beobachten, sollten die Frequenzen f_1 und f_2 unabhängig von r_s sein. Die Position der Schalen-Minima variiert ebenfalls nicht mit der Jellium-Dichte. Daher sollte auch die Summe $\varphi_1 + \varphi_2$ praktisch nicht vom Wigner-Seitz Radius abhängen. Die Verschiebung der Superschalen-Knoten ließe sich dagegen durch $\varphi_1 - \varphi_2 \propto 1/r_s$ erklären.