

In/Cu(001)表面における電荷密度波相転移の精密構造解析研究

八田 振一郎^a, 嶋田 恵朋^b, 坂田 修身^b, 有賀 哲也^a

^a京都大学・理学研究科、^b高輝度光科学研究センター

背景： Nakagawa ら^{1,2)}は、Cu(001)表面上に吸着した In 単原子層において、電子-格子相互作用と Fermi 面ネスティング効果が協奏的に働き、電荷密度波 (CDW) 状態が実現することを見いだした。金属超薄膜における CDW 転移は、電気伝導性などの物性の劇的な変化を伴うと考えられ、ナノテクノロジーにおける新しいデバイスの可能性を示すものとして注目を集めている。

我々は、この系について角度分解光電子分光による詳細な研究を行った。³⁾ これによると、CDW 相で観測される CDW ギャップの温度依存性は、いわゆる BCS のギャップ方程式で予想される振る舞いと良く一致する。このことから、この CDW 転移が、平均場近似で記述される弱結合 CDW としての性質を有し、構造的見地からは変位型の転移であることが帰結される。ところが、他方、我々が既に行った走査トンネル顕微鏡 (STM)、低速電子回折 (LEED) による研究結果によると、この CDW 転移に伴って、秩序-無秩序的な構造転移が起こっている。

これらの結果から、この系で観測されている相転移は、弱結合 CDW 相転移と、強結合 CDW 型の秩序-無秩序相転移が複合したものであり、いずれかが引き金になって、電子エントロピーと格子エントロピーの協奏的效果によって進行しているのではないかと考えている。

このような描像の是非を確かめるためには、(1) 低温相および高温相の精密構造解析をおこな

(3) その臨界挙動を明らかにすることが重要である。

本研究では、In 被覆率 0.63 ML において生成する室温 $c(4 \times 4)$ 電荷密度波相と高温の $p(2 \times 2)$ 通常金属層との間の相転移について、表面 X 線回折により、上記 3 点を解明することを目的とした。

実験： 実験は BL13XU の超高真空表面 X 線回折計を用いて行った。X 線の波長としては 0.609 Å を用いた。試料の作成は、超高真空装置内において、既報^{1,2,4)}の方法により行った。

結果： まず、**低温** $c(4 \times 4)$ 相における原子座標を精密決定するため、室温および 20 K において $(h, k, 0.3)$ における面内回折強度分布と、いくつかの逆格子ロッドの強度分布測定を行った。図 1 は、超構造反射の面内強度分布から合成された Patterson マップである。いくつかのピークが現れているが、最も興味深い特徴は、バルク (1×1) の対称方位から外れた方向に対相関ピークが現れていることである。この $c(4 \times 4)$ 相の構造については、低速電子回折の動力的解析に基づき、既に構造モデルが提出されている⁵⁾が、この構造モデルではこのような位置にピークは現れないので、このモデルが誤りであることがわかる。

Patterson マップから、低温 $c(4 \times 4)$ 構造においては、In 原子が対称性の低いサイトを占めていることがわかる。これに基づき、現在構造解析を進めており、 χ^2 10 程度にまで達している。最終的に構造決定するためには、さらにいくつかの構造パラメータを最適化しなくてはならず、現在リフ

アインを進めている。また、full-potential APW+lo 法による第一原理電子状態計算に基づく構造最適化を併せて実行することにより、回折法的には許されるが物理的には非合理的な構造、構造パラメータの棄却を行うことにより、より信頼性の高い構造決定を進めている。また、これにより同時に価電子バンド構造が得られるので、これを角度分解光電子分光の結果と比較対照することにより、CDW の秩序パラメータに対応する周期的格子変調のモードを抽出することができるのではないかと考えている。

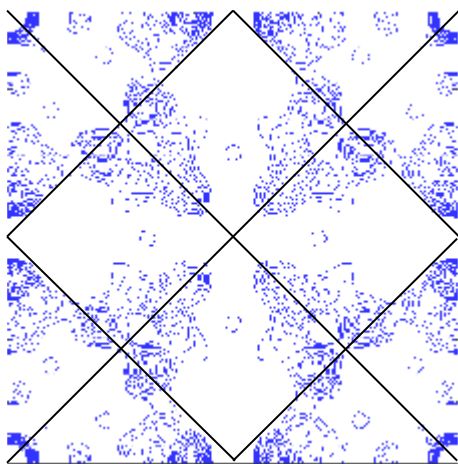


図 1. Cu(001)-c(4x4)-In 相の Patterson マップ。図中の格子線は Cu(001)-(1x1)格子を示す。

図 2 に、c(4x4)超構造に由来する回折点のピーク強度と半値幅を温度の関数として示した。このデータは、c(4x4)と p(2x2)の相転移が Ising 模型的な秩序—無秩序転移の性格を強くもつことを示している。このことは、一見すると変位型転移を示唆する角度分解光電子分光の結果と矛盾するようだが、両者が重畳しているためと考えている。このデータを詳細に解析することにより、転移の様相が明らかになると考える。

さらに、p(2x2)超構造に由来する逆格子ロッドの強度分布を、300 K、370 K、420 K の各温度で

測定した。この転移が純粋な秩序—無秩序転移であれば、これらは一致するはずであるが、実際には特徴的な温度依存性が見られた。この温度に依存する逆格子ロッドの変化は、CDW ギャップの変化に対応する変位型秩序パラメータと強く関連していると考えられるので、その解析を進めている。

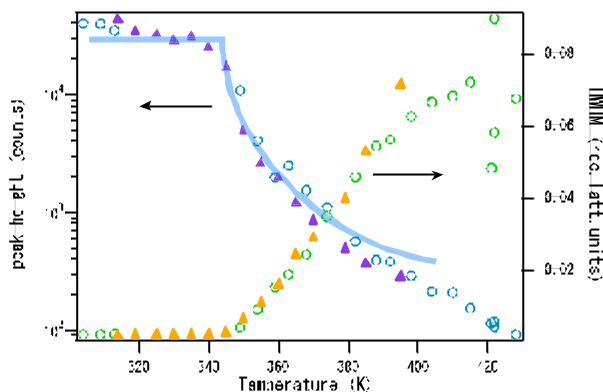


図 2. c(4x4)超構造に由来する回折点のピーク強度と幅の温度依存性

今後の課題：現在、低温相の精密構造解析を進めている。至急完了したい。相転移の性格を明らかにするためには、転移点近傍および高温相の構造についてなんらかの定量的な情報が必要であることがわかってきた。転移点近傍における格子変形を精密に解析する目的で、350—410 K における回折プロファイルの精密測定を行いたい。

参考文献

- 1) T. Nakagawa et al., Phys. Rev. Lett. **86**, 854 (2001).
- 2) T. Nakagawa et al., Phys. Rev. B **67**, 241401 (2003).
- 3) S. Hatta et al., to be published.
- 4) T. Nakagawa et al., Phys. Rev. B **66**, 085402 (2002).
- 5) K. Pussi et al., Surf. Sci. **526**, 141 (2003).