

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 10 日現在

機関番号：82110
 研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2010～2012
 課題番号：22740205
 研究課題名（和文） 新奇な金属絶縁体転移を伴う最表面低次元構造の研究

研究課題名（英文） Study of novel low-dimensional surface structure showing metal-insulator transition

研究代表者

深谷 有喜（FUKAYA YUKI）

独立行政法人日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究副主幹

研究者番号：40370465

研究成果の概要（和文）：本研究では、結晶表面上に形成される低次元構造の構造物性を解明するために、Ge(001)表面上への Pt 原子吸着により発現する一次元原子鎖の原子配置と相転移に伴う原子変位の解明を行った。始めに、最適な Pt 原子の蒸着条件を見出し、欠陥が少なくかつ広範囲にわたって均一な一次元原子鎖を作製した。反射高速陽電子回折（RHEPD）を用いた構造解析から、理論計算により提案されている Ge 原子鎖モデルを考慮すると実験結果をよく説明できることが分かった。約 90 K 以下において、走査型トンネル顕微鏡（STM）観察と RHEPD 強度の温度依存性から構造の周期性の 2 倍化が観測された。低温相（35 K）の構造解析から、90 K 以下では最表面の Ge ダイマーが非対称化することが分かった。この相転移は変位型に分類されると考えられる。

研究成果の概要（英文）：In this study, in order to elucidate the atomic structure of one-dimensional atomic wires on a crystal surface and its displacements due to the metal-insulator transition, the Pt/Ge(001) surface has been investigated by using reflection high-energy positron diffraction (RHEPD). By using the scanning tunneling microscopy (STM), we confirmed that defect-free and long-range ordered atomic wires are formed on the Pt/Ge(001) surface. By means of the rocking curve analyses based on the dynamical diffraction theory, we found that the experimental curve at room temperature can be well explained by considering the Ge dimer model expected by the theoretical calculations. We also found that below 90 K the Pt/Ge(111) surface undergoes the phase transition from the symmetric to asymmetric dimer structure.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2011 年度	600,000	180,000	780,000
2012 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：表面・界面、陽電子

1. 研究開始当初の背景

近年デバイスの微細化に伴い、カーボンナ

ノチューブやグラフェンに代表されるようなナノメートルサイズの低次元構造の作製が精力的に行なわれている。最近では、コンダクタンスの量子化やラッティンジャー液体など低次元系特有の興味深い物性が報告され始めており、これら低次元物性の解明が急ピッチで行なわれている。

一次元金属構造の電荷秩序は、パリエルス不安定性のために、温度変化に対して非常に大きな影響を受ける。例えば、半導体であるSi(111)表面上にIn原子を吸着させると一次元金属鎖を形成することが知られている。実際に、この一次元金属鎖を冷却することにより、金属絶縁体転移が明瞭に観察される。しかし、結晶表面上で作製される一次元金属構造は、現在のところIn/Si(111)やIn/Cu(001)などの限られた系でしか報告されておらず、一次元金属構造の低温での原子変位や電荷密度波の形成メカニズムに関してはまだ不明な点が多い。したがって、これらの物性の解明が現在非常に重要になってきている。

2. 研究の目的

本研究では、結晶表面上に構築した新しい一次元原子鎖であるPt/Ge(001)表面に着目し、反射高速陽電子回折法(RHEPD)と走査型トンネル顕微鏡(STM)を用い、一次元原子鎖の原子配置と低温における金属絶縁体転移のメカニズムを解明することを目的とする。

3. 研究の方法

Ge(001)-2x1 清浄表面上に、620 KでPt原子を1.2原子層蒸着させることにより、Pt/Ge(001)表面を作製する。STM観察から、均一な一次元原子鎖の形成を確認した後、RHEPDを用いて、高温相と低温相からのロッキング曲線の測定および温度依存性の測定を行う。動力学的回折理論に基づいた構造解析から、相転移前後の最適な原子配置を決定する。

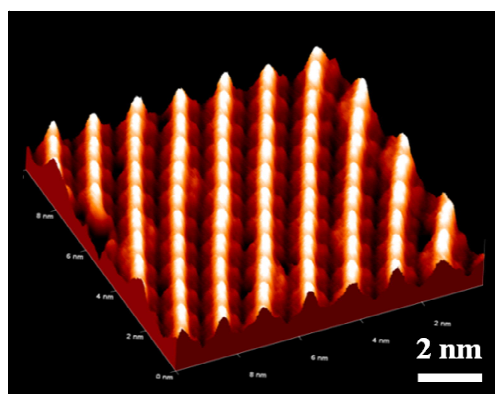


図1 Ge(001)-(4x2)-Pt表面のSTM像(室温)

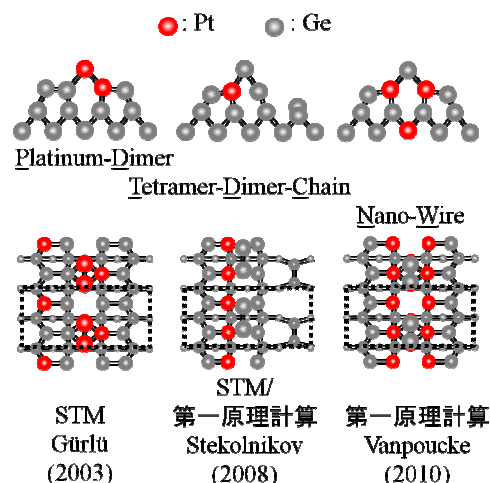


図2 STM観測および理論計算により提案されたGe(001)-(4x2)-Pt表面の構造モデル。

4. 研究成果

RHEPDによる構造解析に先立ち、Pt/Ge(001)表面上における一次元原子鎖構造の最適な作製条件を確立した。図1に、室温におけるPt/Ge(001)表面のSTM像の観察結果を示す。Ge(001)-(4x2)-Pt表面上に欠陥のない約1.6nmの幅を持つ一次元原子鎖構造が見取れる。以上の結果から、広範囲で均一かつ欠陥の非常に少ない一次元原子鎖構造の形成を確認した。

Pt/Ge(001)表面の原子配置に関して、これまでにSTM観察や理論計算から様々な構造モデルが提案されている。図2に代表的な3つの構造モデル(Platinum-Dimer(PD)、Tetramer-Dimer-Chain(TDC)、Nano-Wire(NW))を示す。最表面原子がPt原子やGe原子で構成される一次元原子鎖の構造モデルが提案されているが、実験的にはまだ検証がなされていない。さらにこの一次元原子鎖では、約70Kでパリエルス転移を起こす可能性が報告されている。理論計算では、Pt原子の被覆率が異なる複数の構造モデルが提案されており、その相転移はPt原子の被覆率の変化に起因すると考えられている。そこで、様々な入射条件でのロッキング曲線の測定と解析から、Pt/Ge(001)表面のPt原子の被覆率と詳細な原子配置の決定を行った。

始めに、RHEPD強度の温度依存性の測定および様々な温度でのSTM観察から、90K近傍で構造の周期性の2倍化(4x2から4x4への構造変化)を確認した。図3に35Kで測定したPt/Ge(001)表面からのRHEPDロッキング曲線を示す。Pt/Ge(001)表面からの

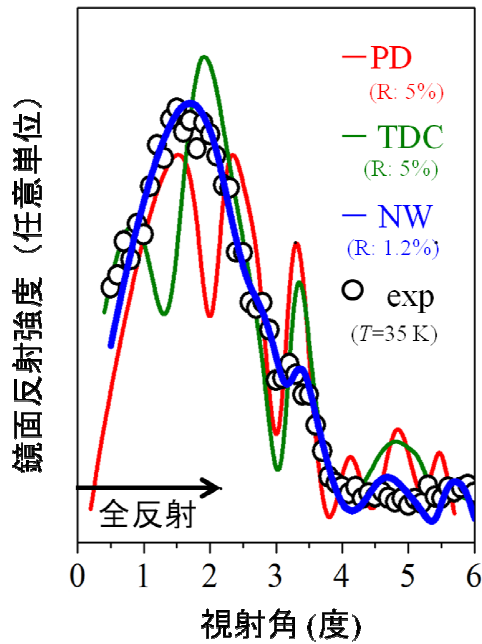


図3 低温相 (35 K) からの RHEPD ロッキング曲線の測定結果 (白丸) と様々な構造モデル (赤線: PD、緑線: TDC、青線: NW) を基にして構造最適化した後のロッキング曲線の計算結果。入射方位: [110] から 23°オフ、入射エネルギー: 10 keV。R は信頼度因子である。

RHEPD ロッキング曲線は、Ge(001)清浄表面のものと比較して、視射角 2~3°付近の鏡面反射強度が相対的に大きくなり、一次元原子鎖の形成に起因したロッキング曲線の変化が確認された。これまでに提案されている構造モデルを用い、動力学的回折理論に基づく強度解析から、理論計算により提案されている Pt 原子の被覆率が 0.75 原子層である NW モデルを考慮するとロッキング曲線の大まかな特徴を再現できることが分かった。また、詳細な構造の最適化から、最表面の Ge ダイマーの高さに 0.22 Å の差が生じる非対称ダイマーを仮定すると実験結果を非常によく説明できることが分かった (表 1)。理論計算では、最表面 Ge 原子は対称ダイマーを形成すると報告している。したがって、Pt 原子の被覆率が 0.75 原子層である理論計算の結果は概ね妥当であるが、低温相では最表面 Ge 原子が非対称ダイマーを形成する 4×4 構造が基底状態である。この原因として、電荷密度波形成や格子エネルギーの利得などが考えられる。

一方、室温における RHEPD ロッキング曲

	<i>a</i>	<i>b</i>	<i>c</i> (=√ <i>c</i> ² + <i>c</i> _∥ ²)	<i>d</i> (Å)
Low T (<80 K)	0.22 (±0.10)	0.74 (±0.17)	3.4 (±0.2)	2.9 (±0.2)
Theory	<0.03	0.52	3.13	2.72

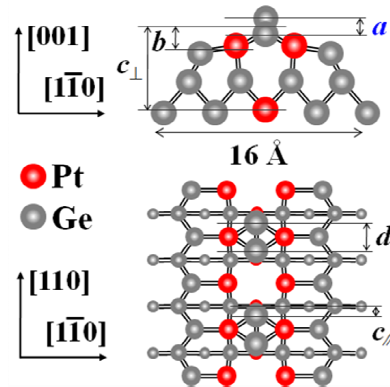


表 1 RHEPD ロッキング曲線の解析により得られた Pt/Ge(001)表面の最適な原子配置 (低温相)。比較のため、理論計算により決定された原子位置も示す。

線の測定と解析から、相転移前後で Pt 原子の被覆率は変化しないが、高温相では最表面 Ge 原子は対称ダイマーを形成していることが分かった。したがって、この相転移は変位型に分類される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

① Y. Fukaya, I. Matsuda, R. Yukawa, and A. Kawasuso, Structure analysis of Si(111)-√21×√21-(Ag, Cs) surface by reflection high-energy positron diffraction, *Surface Science* **606**, 1918-1921 (2012). (査読有)

DOI: 10.1016/j.susc.2012.07.039

② Y. Fukaya, I. Mochizuki, and A. Kawasuso, Charge transfer and structure of K/Si(111)-2√3×2√3-B surface studied by reflection high-energy positron diffraction, *Physical Review B* **86**, 035423 (5 pages) (2012). (査読有)

DOI: 10.1103/PhysRevB.86.035423

③ Y. Fukaya, K. Kubo, T. Hirahara, S. Yamazaki, W. H. Choi, H. W. Yeom, A. Kawasuso, S. Hasegawa, and I. Matsuda, Atomic and electronic structures of Si(111)-√21×√21 superstructure, *e-Journal of Surface Science and*

Nanotechnology **10**, 310-314 (2012). (査読有)

DOI: 10.1380/ejssnt.2012.310

④ I. Mochizuki, Y. Fukaya, A. Kawasuso, K. Yaji, A. Harasawa, I. Matsuda, K. Wada, and T. Hyodo, Atomic configuration and phase transition of Pt-induced nanowires on a Ge(001) surface studied using scanning tunneling microscopy, reflection high-energy positron diffraction, and angle-resolved photoemission spectroscopy, *Physical Review B* **85**, 245438 (6 pages) (2012). (査読有)

DOI: 10.1103/PhysRevB.85.245438

⑤ Y. Fukaya, I. Matsuda, M. Hashimoto, K. Kubo, T. Hirahara, S. Yamazaki, W. H. Choi, H. W. Yeom, S. Hasegawa, A. Kawasuso, and A. Ichimiya, Atomic structure of two-dimensional binary surface alloy: Si(111)- $\sqrt{21}\times\sqrt{21}$ superstructure, *Surface Science* **606**, 919-923 (2012). (査読有)

DOI: 10.1016/j.susc.2012.02.006

⑥ K. Wada, T. Hyodo, A. Yagishita, M. Ikeda, S. Ohsawa, T. Shidara, K. Michishio, T. Tachibana, Y. Nagashima, Y. Fukaya, M. Maekawa, and A. Kawasuso, Increase in the beam intensity of the linac-based slow positron beam and its application at the Slow Positron Facility, KEK, *The European Physical Journal D* **66**, 37 (4 pages) (2012). (査読有)

DOI: 10.1140/epjd/e2012-20641-4

⑦ Y. Fukaya, A. Kawasuso, and A. Ichimiya, Surface Plasmon Excitation at Topmost Surface in Reflection High-Energy Positron Diffraction, *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology* **8**, 190-193 (2010). (査読有)

DOI: 10.1380/ejssnt.2010.190

⑧ I. Matsuda, F. Nakamura, K. Kubo, T. Hirahara, S. Yamazaki, W. H. Choi, H. W. Yeom, H. Narita, Y. Fukaya, M. Hashimoto, A. Kawasuso, M. Ono, Y. Hasegawa, S. Hasegawa, and K. Kobayashi, Electron compound nature in a surface atomic layer of a two-dimensional hexagonal lattice, *Physical Review B* **82**, 165330 (6 pages) (2010). (査読有)

DOI: 10.1103/PhysRevB.82.165330

⑨ Y. Fukaya, A. Kawasuso, and A. Ichimiya, Surface plasmon excitation at metal surfaces studied by reflection high-energy positron diffraction, *Journal of Physics: Conference Series* **225**, 012009 (5 pages) (2010). (査読有)

DOI: 10.1088/1742-6596/225/1/012009

⑩ Y. Fukaya, M. Hashimoto, A. Kawasuso, and A. Ichimiya, Structure and phase transition of low-dimensional metals on Si(111) surfaces studied by reflection high-energy positron diffraction, *Journal of Physics: Conference Series* **225**, 012008 (8 pages) (2010). (査読有)

DOI: 10.1088/1742-6596/225/1/012008

[学会発表] (計 23 件)

① 深谷有喜, 河裾厚男, 一宮彪彦, エネルギー分析型反射高速陽電子回折を用いた Si(111)表面上の In 原子鎖における表面プラズモン励起の研究, 第 47 回アイソトープ・放射線研究発表会 (東京, 2010 年 7 月 8 日)

② 深谷有喜, 河裾厚男, 反射高速陽電子回折によるアルカリ金属吸着 Si(111)- $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 表面の相転移の研究, 日本物理学会 2010 年秋季大会 (堺, 2010 年 9 月 23 日)

③ 望月出海, 深谷有喜, 河裾厚男, 反射高速陽電子回折による Pt/Ge(001)表面の一次元原子鎖の構造解析, 日本物理学会 2010 年秋季大会 (堺, 2010 年 9 月 23 日)

④ 望月出海, 深谷有喜, 河裾厚男, 反射高速陽電子回折を用いた Pt/Ge(001)表面の一次元原子鎖構造と相転移の研究, 第 30 回表面科学学術講演会 (吹田, 2010 年 11 月 5 日)

⑤ 深谷有喜, 河裾厚男, 反射高速陽電子回折による K/Si(111)- $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 表面の構造と相転移の研究, 第 30 回表面科学学術講演会 (吹田, 2010 年 11 月 6 日)

⑥ Y. Fukaya, I. Mochizuki, and A. Kawasuso, Charge transfer and structure of alkali metals on Si(111)- $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B surface studied by reflection high-energy positron diffraction, *Symposium on Surface and Nano Science 2011* (Shizukuishi, 20 January, 2011)

⑦ 望月出海, 深谷有喜, 河裾厚男, 反射高速陽電子回折による Pt/Ge(001)表面相転移の構造解析, 第 48 回アイソトープ・放射線研究発表会 (東京, 2011 年 7 月 8 日)

⑧ 深谷有喜, 前川雅樹, 和田健, 兵頭俊夫, 河裾厚男, KEK-RHEPD 実験ステーションの現状, 第 48 回アイソトープ・放射線研究発表会 (東京, 2011 年 7 月 8 日)

⑨ Y. Fukaya, I. Mochizuki, and A. Kawasuso, Atomic structure and charge transfer of alkali metals on Si(111)- $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B surface studied by reflection high-energy positron diffraction, *28th European Conference on Surface Science* (Wrocław, 30 August, 2011)

⑩ 望月出海, 深谷有喜, 河裾厚男, 反射高速陽電子回折による歪導入 Sn/Ge(111)表面の構造解析, 日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山, 2011 年 9 月 21 日)

⑪ 深谷有喜, 松田巖, 望月出海, 河裾厚男, 反射高速陽電子回折による Ag(111)薄膜表面上における Bi 原子の吸着位置の解析, 日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山, 2011 年 9 月 23 日)

⑫ 深谷有喜, 反射高速陽電子回折による最表面構造に関する研究, 日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山, 2011 年 9 月 24 日)

⑬ Y. Fukaya, I. Matsuda, K. Kubo, T. Hirahara, S. Yamazaki, W. H. Choi, H. W. Yeom, S.

Hasegawa, and A. Kawasuso, Atomic and electronic structures of Si(111)- $\sqrt{21}\times\sqrt{21}$ -(Au,Ag) superstructure, International Symposium on Surface Science -Towards Nano-, Bio- and Green Innovation- (ISSS-6) (Tokyo, 13 December, 2011)

⑭ 望月出海, 深谷有喜, 河裾厚男, 反射高速陽電子線回折を用いた Pt/Ge(001)表面の一次元鎖構造と相転移の研究 II, 第 31 回表面科学学術講演会 (東京, 2011 年 12 月 16 日)

⑮ 深谷有喜, 松田巖, 前川雅樹, 和田健, 兵頭俊夫, 河裾厚男, 高輝度反射高速陽電子回折を用いた Ag(111)薄膜表面上の Bi,Pb 原子位置の Ag 膜厚依存性の研究, 第 31 回表面科学学術講演会 (東京, 2011 年 12 月 16 日)

⑯ 望月出海, 深谷有喜, 河裾厚男, 反射高速陽電子回折を用いた Pt/Ge(001)表面相転移の解析, 日本物理学会第 67 回年次大会 (西宮, 2012 年 3 月 24 日)

⑰ 望月出海, 深谷有喜, 前川雅樹, 河裾厚男, 和田健, 兵頭俊夫, 高輝度反射高速陽電子回折を用いた半導体表面 1 次元鎖構造における原子配置と相転移の解析, 第 49 回アイソトープ・放射線研究発表会 (東京, 2012 年 7 月 10 日)

⑱ Y. Fukaya, I. Matsuda, M. Maekawa, I. Mochizuki, K. Wada, T. Hyodo, and A. Kawasuso, Atomic-scale investigations of topmost surface structures by using reflection high-energy positron diffraction, 16th International Conference on Positron Annihilation (ICPA-16) (Bristol, 21 August, 2012)

⑲ 望月出海, 深谷有喜, 前川雅樹, 河裾厚男, 和田健, 兵頭俊夫, 反射高速陽電子回折による歪導入した半導体表面における金属吸着超構造の研究, 日本物理学会 2012 年秋季大会 (横浜, 2012 年 9 月 20 日)

⑳ 深谷有喜, 反射高速陽電子回折の実験, PF 研究会「KEK 低速陽電子実験施設における陽電子回折研究および Ps ビーム研究の新展開」(つくば, 2012 年 10 月 3 日)

㉑ 深谷有喜, 前川雅樹, 望月出海, 和田健, 兵頭俊夫, 河裾厚男, 高輝度反射高速陽電子回折装置の開発と表面構造解析への応用, 第 32 回表面科学学術講演会 (仙台, 2012 年 11 月 22 日)

㉒ 深谷有喜, 反射高速陽電子回折 (RHEPD) 法による物質最表面構造解析, 第 1 回先進的観測技術研究会-局所構造解析, イメージングの最前線- (つくば, 2012 年 12 月 26 日)

㉓ 深谷有喜, 前川雅樹, 望月出海, 和田健, 兵頭俊夫, 河裾厚男, 高輝度反射高速陽電子回折装置の開発と表面研究への応用, 日本物理学会第 68 回年次大会 (東広島, 2013 年 3 月 26 日)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

深谷 有喜 (FUKAYA YUKI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究副主幹

研究者番号 : 40370465

(2) 研究分担者

()

研究者番号 :

(3) 連携研究者

()

研究者番号 :