

吸着単原子層の秩序状態

阪大理 鏑木 誠

§1 はじめに

固体表面に吸着した原子、分子の電子状態、surface structureが、LEED、FEED、等によって、実験的に詳しく調べられるようになった。^{1)~6)}それによるとadatomのsurface structureは、いくつかの適当な coverages で、orderした2次元結晶を作り、他の coverage では disorder になっている。Fig-1にNa/W(110)の ordered stateに、ついでLEEDの結果を示す。⁴⁾一方理論面に於ては、Anderson Model、CNDO等を用いた研究が数多くな

されている⁷⁾が、adatomの surface structure を説明するまでには、至っていない。ここでは、この様なMicroな立場から離れて、adatom間の interactions J_k をパラメーターとして扱い、Classical Lattice Gas Model を用いて、どの coverage でどのような ordered structure が出現するか予測する方法、また逆に実験で得られた ordered

structureから、adatom間の interaction J_k 間の大小関係を、決定する方法を述べる。

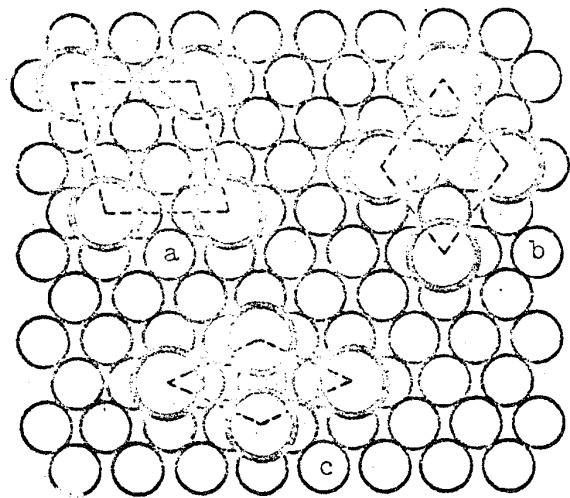


図1 Unit cells of sodium film structures: a) $n_{Na} : n_W = 1:6$, b) 1:4, c) 1:3.

§2 Model と計算方法

AdatomのHamiltonianとして、次の様なものを採る。

$$H = \frac{1}{2} \sum_{ik} J_k n_i n_{i+\rho_k} \quad (1)$$

ここで i は adatom の available site につけた番号, n_i は i -site に adatom があるか否かによって, 夫々 1, 0 の値をとり, J_k は adatom 間の k -th neighbour interaction である。この Model では, 次の仮定をしている。(a) adatom の吸着する位置は, Lattice を作っている。(b) adatom 間の interaction J_k は coverage に依らない。仮定(a)は coverage の大きい所では成立しない。又(b)は近似的にしか成立しない。⁸⁾ 以下では, $J_k > 0$ と仮定する。($J_k < 0$ の場合も, 同様の方法が使える。) (1) を変形すると,

$$H = \sum_k J_k p_k \quad (2)$$

但し $p_k = \frac{1}{2} \sum_i n_i n_{i+\rho_k}$ で, p_k は J_k で interact している adatom pair の数である。 p_k 間には, coverage を, 含んだいくつもの不等式が存在し, それを用いて(2)を min にする p_k , i. e. adatom 系の ground state を与える surface structure を決定することが出来る。この方法は Ising Spin 系の magnetization process の解析に, Kanamori が用いたものである。⁹⁾ 方法の概略は, 次の様なものである。 p_k に対する不等式から, Energy vs coverage θ のグラフを求めると, Fig-2 の様になる。ここで θ が, θ_1, θ_2 のとき,

夫々 Energy E_1, E_2 をもった ordered structure が実現しているとする。中間の θ_0 で, E_a の如く $(\theta_1, E_1), (\theta_2, E_2)$, を結ぶ直線上の E_b よりも低い Energy をもった ordered structure が存在する場合には, $\theta = \theta_0$ で実現されるのは, その

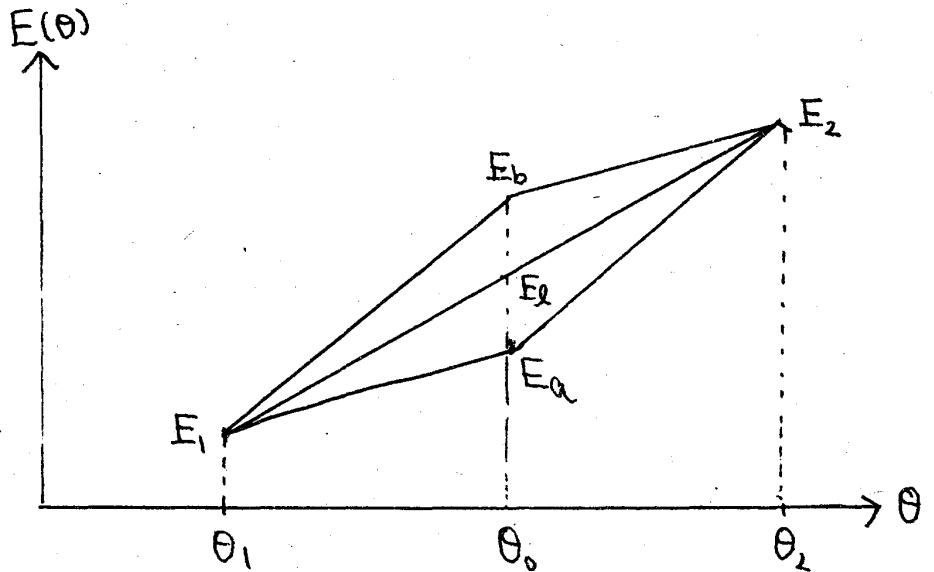


図2 $E(\theta)$ vs θ の Graph.

安藤恒也

structure である。一方、 θ_0 での ordered structure が、 E_b の如く、 E_ℓ よりも高い Energy をもっている場合には、 E_1 と E_2 の structure を mixして、 E_ℓ の Energy をもった方が Energy 的に得である。即ち、 $\theta = \theta_0$ で新しい ordered structure は、出現しない。 θ_0 で Energy が、 E_a になるか、 E_b になるかを決定するのは J_k の大小関係であり、これによって実験で得られた ordered structure と J_k が関係づけられる。

§3 結果

W(110)面、W(100)面、Graphite に対応して、Square, Face Centered Rectangular, Trigonal, の各格子について、解析を行っているが、ここでは、それをすべて述べる余裕はないので、次の事を指摘するに止めておく。

(1) Square Lattice (H/W(100)面) J_3 まで取る

実験で得られた $c(2 \times 2)$ だけが出現する為には、 $J_2 < 0$, $J_3 < 2|J_2|$, $J_1 > 0$ でなければならない。他の場合は、 $\theta = \frac{1}{3}$, $\frac{1}{4}$ 等に ordered structure が現われる。

(2) F. C. R. Lattice (Na/W(110)), J_7 まで取る。

Fig 1に示したように $\theta = \frac{1}{6}$ で ordered structure が現われ、 $\theta = \frac{1}{7}$ で現われない場合は、 $J_6 < J_7$ i.e. 6-th neighbour 間の interaction より大となっている。これは、Friedel Oscillation のような振動が J_k にある事を示している。

References

- 1) See for a review of gas adsorption G. A. Somorja Surface Sci 34 (1973)156 -
- 2) J. J. Lander and J. Morrison Surface Sci 6(1967)1
- 3) J. Schmidt J. Vac. Sci. Tech 9(1972)882
- 4) A. G. Naumovets and A. G. Fedorus Soviet. Phys. JETP 10(1969)6
- 5) E. W. Plummer and R. D. Young Phys. Rev. B1(1970)2088
- 6) D. Penn, R. Gomer and M. H. Cohen Phys. Rev. B5(1972)768
- 7) See for a review of adsorption theories J. R. Schrieffer J. Vac. Sci. Tech 9(1972)561
- 8) E. V. Klimenko and A. G. Naumovets Surface. Sci. 14(1969)141

9) J. Kanamori Prog. Theor. Phys (Kyoto) 35(1966)16