

酸素単分子層における2次元磁性

東大理 村上洋一、寿栄松宏仁

酸素分子は、スピン $S = 1$ をもち、凝縮相において磁性体となる唯一のガスである。酸素分子をグラファイト上に物理吸着させることによって、理想的な2次元磁性体を作ることができる。従来の擬2次元磁性体では、いかにその2次元性がよくても、低温で面内の相関が広がると必ず3次元秩序状態を作ってしまう。この意味で現在の系は真の2次元秩序を研究するのに最適の系である。酸素分子間にはハイゼンベルグ的反強磁性相互作用が働くことが期待されるので、この系は、2次元ハイゼンベルグ反強磁性体とみなすことができる。

この系は約10年ほど前から、中性子回折¹⁾、X線回折²⁾、帯磁率³⁾、比熱⁴⁾、LEED⁵⁾等の実験的研究が蓄積されてきた。磁気相転移に関しては、Nielsen, McTague が中性子回折より、 $T_m = 11.9$ K でスピンの面内にねた1軸性の反強磁性体に相転移することを報告した。¹⁾ この転移は、磁歪を伴っていることが、X線、中性子回折により観測され、比熱もピークを示す。しかし、帯磁率、LEED ではその温度で何の異常も観測されていなかった。今回、我々はSQUID磁束計を用い、各被覆率において精密に静帯磁率を測定した。特に転移温度近傍での帯磁率の温度変化を詳しく測定した。

基盤には、グラファイトを約100層おきに剥離したグラフォイル(表面積は約 $24\text{m}^2/\text{g}$)を用いた。グラフォイルは 800°C で約1週間ベーキングされた後、表面積が窒素ガスを吸着させて測られる。その後十分に真空を引き冷却する。酸素分子は $T = 53$ K(ぬれ転移温度)で微量ずつ導入され、ゆっくり冷却される。特に、融解転移点近傍では、最低15分はアニールを行う。早く冷却すると、帯磁率は真の値よりも大きめに出て、磁気転移点での異常は消える。以下に示す帯磁率は、基盤のグラフォイルの帯磁率を差し引いたものである。

図1(a)に、我々の帯磁率測定より求められた温度-被覆率の相図を示す。黒丸はc面内方向、白丸はc軸方向の帯磁率測定から得られたものである。1図(b)に各相の結晶構造を示す。低密度相 δ では酸素の分子軸はグラファイト面と平行であり、ほぼ面心長方格子を作っている。高密度相 ζ では、分子軸はグラファイト面と垂直であり、ほぼ3角格子を作っている。高密度相 ϵ は3角格子が1方向に伸びた構造を持ち、磁気秩序相と考えている。また、高被覆率領域で現れる、 α 、 β 相は、バルク酸素の相であり、 α 相は反強磁性相である。バルクはほぼ2分子層よりも高被覆率で現れる。

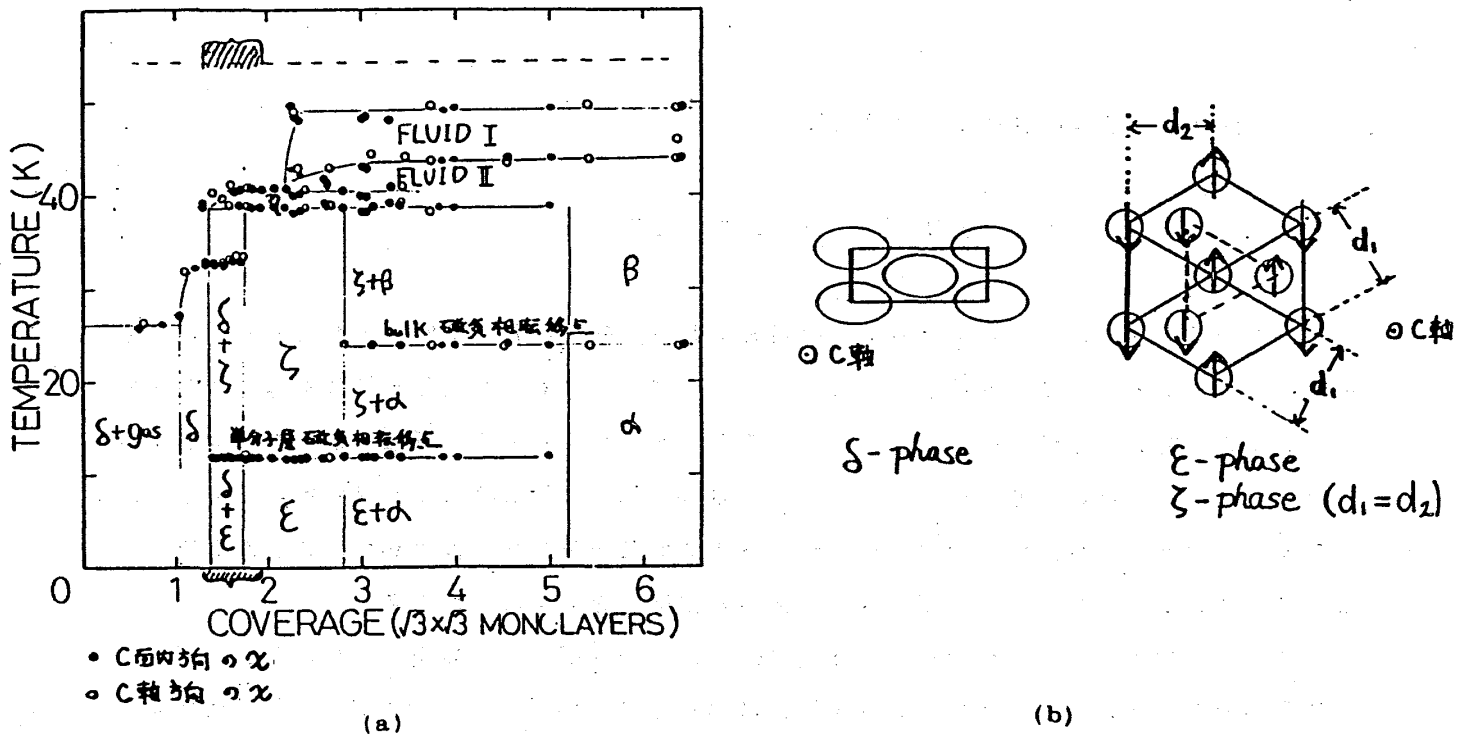


図1 相図と結晶構造

図2は、c面内方向に $H=500$ Oeかけて測定した静帯磁率の温度依存性である。被覆率は、純粋な δ 相から ζ 相までの範囲を示している。(図1(a)の斜線部分) $c=1.40$ はほぼ完全な δ 相で、 $T=33$ Kでの帯磁率のとびは、その融解転移を示している。 $c=1.61, 1.71$ は、 δ 相と ζ 相の共存領域で、 $T=41$ Kが ζ 相の融解転移点である。一方、 $c=1.82, 1.92$ では、 ζ 相の融解が $T=41$ K, 39 Kで2段階に起こっている点である。X線回折からのモデルによると、 $T=41.5$ K, 39.0 Kでの帯磁率のとびは、それぞれ第1層目及び第2層目 ζ 層の融解転移を示している。この解釈は後で示すように、帯磁率の融解点での変化量の被覆率依存性からも支持される。図2(b)は図2(a)の1部分を広げたもので、磁気相転移点 $T_m=12$ K近傍を詳しく示している。 $c=1.40$ からこの異常は現れ始め、 $c=1.71$ で完成する。それ以上の被覆率では T_m での変化量は殆ど変わっていない。また、c面内の帯磁率 χ は $\frac{1}{2}(\chi_{\parallel} + \chi_{\perp})$ を予測していたが、その転移点以下での温度変化は非常に小さく、 χ_{\perp} の温度変化のように見える。

図3は、面内方向の帯磁率測定から得られた、各相の融解転移点及び磁気転移点での帯磁率の変化量 $\Delta\chi$ の被覆率依存性を示している。低被覆率の方から、 δ 相融解の $\Delta\chi$ が落ちてくると、 ζ 相第一層目融解の $\Delta\chi$ が増加し、 $c=1.80$ 付近でほぼ一定になる。磁気相転移での $\Delta\chi$ は、それと全く同期している。 $c=1.70$ 付近から ζ 相第二層目の $\Delta\chi$ が増加してくる。X線回折の構造から計算すると、 $c=1.7$ で ζ 相第一層が完成することから、上記の $\Delta\chi$ の被覆率変化は、ほぼ理屈にあっている。また、この結果は、磁気相転移は ζ 相第一層においてのみ起こっていることを示している。 ζ 相の第二層目も第一層目とほぼ同じ格子定数を持っていることを考え

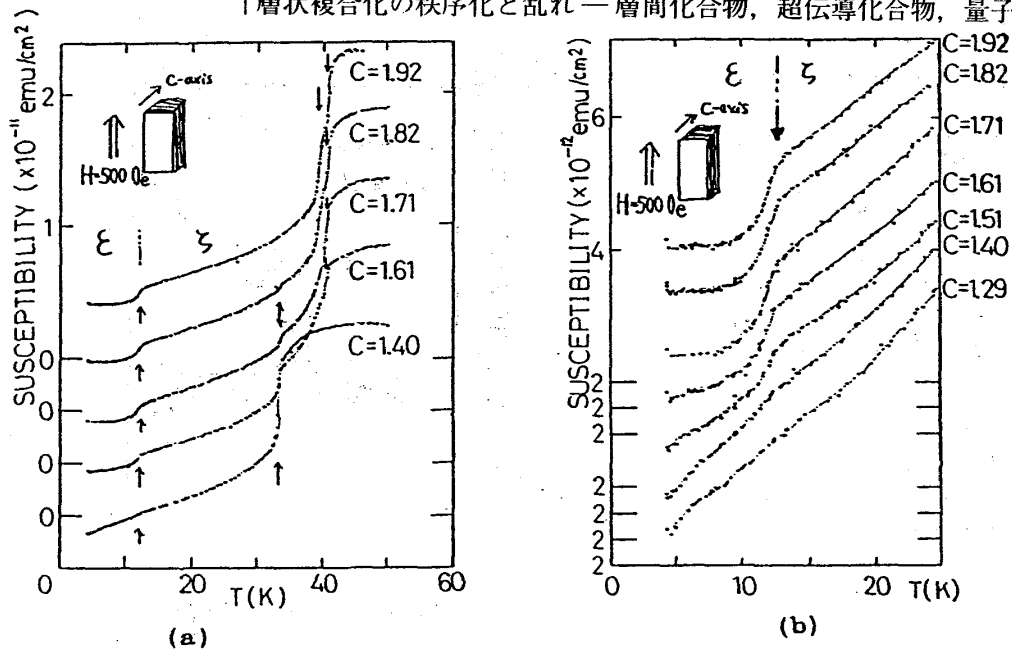


図2 c面内方向の静帯磁率の温度依存性

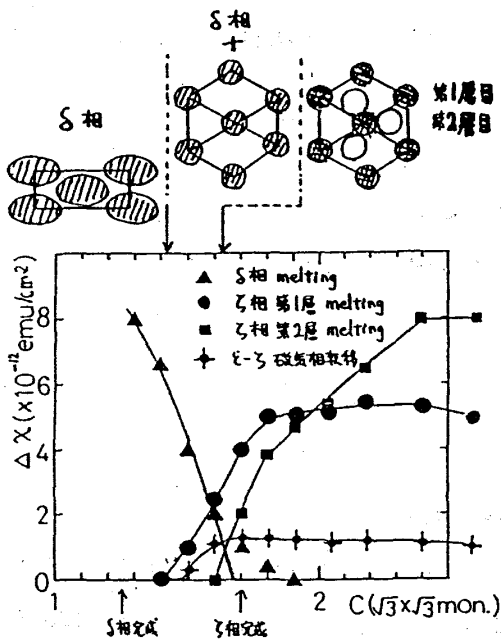


図3 各転移点における帯磁率の変化量 $\Delta\chi$ の被覆率依存性

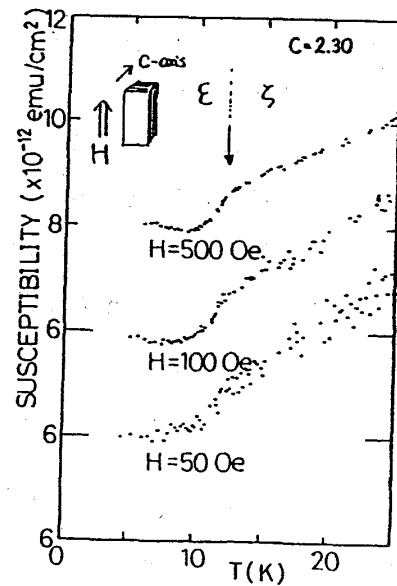


図4 各測定磁場におけるc面内静帯磁率の温度依存性

ると、これは非常に奇妙なことである。図4は、 $c = 2.3$ において磁気相転移近傍での帯磁率の測定磁場依存性を示している。H=50-500 Oeでは、 χ の温度依存性は殆ど変化を受けないことが分かる。

図5は、c軸方向にH=500 Oeをかけたときの静帯磁率の温度依存性を各被覆率ごとに示している。温度領域は磁気転移点近傍に限ってある。その被覆率による変化はc面内方向の帯磁率とほぼ同じである。図6は、 $c = 1.70$ でのc面内方向(●印)とc軸方向(○印)の帯磁率の温度変化を重ねて示している。これから、帯磁率は磁気転移点以下でも殆ど異方性がないことが分かる。もし、H=500 Oeですでにスピントロップ磁場を越えていると考えると、面内異方性

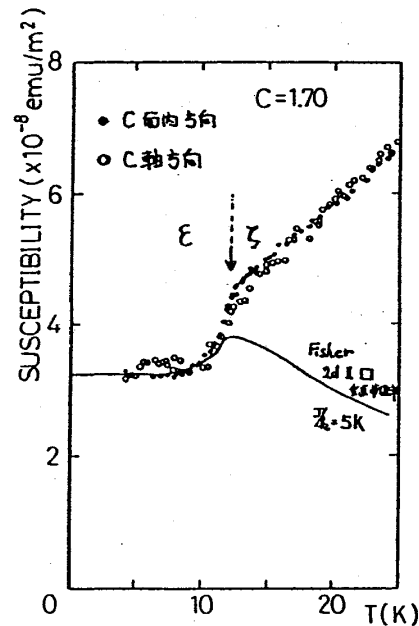
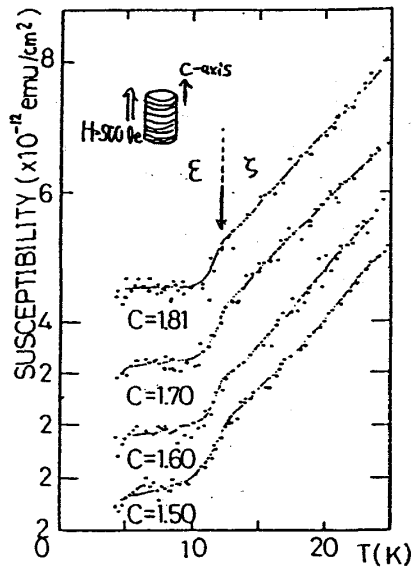


図5 c軸方向の静帯磁率の温度依存性 図6 c=1.70におけるc面内及びc軸方向の静帯磁率

は $H_0 = 0.1$ Oe程度という非常に小さい値になる。或は、この異方性の欠如は、2次元ハイゼンベルグ系の本質であるかもしれない。

以上まとめると、次のことが本研究で明らかになった。

1. 2次元磁気相転移点での帯磁率の異常を初めて観測した。
2. 磁気相転移は第1層目においてのみ起こり、第2層目は関与していない。
3. 帯磁率は磁気相転移点以下でも殆ど異方性を持っていない。

文献

- 1) M.Nielsen and J.P.McTague: Phys. Rev. B19 (1979) 3096.
- 2) P.W.Stephens, P.A.Heiney and R.J.Birgeneau: Phys. Rev. Lett. (1980) 1959. P.A.Heiney, P.W.Stephens, S.G.J.Mochrie, J.Akimitsu and R.J.Birgeneau: Surf. Sci. 125 (1983) 539. S.G.J.Mochrie, M.Sutton, J.Akimitsu and R.J.Birgeneau: Surf. Sci. 138 (1984) 599. K.Morishige, K.Mimata and S.Kittaka: Surf. Sci. 192 (1987) 197.
- 3) S.Gregory: Phys. Rev. Lett. 40 (1978) 723. D.D.Awschalom, G.N.Lewis and S.Gregory: Phys. Rev. Lett. 51 (1983) 586. U.Kobler and R.Marx: Phys. Rev. B35 (1987) 980 9.
- 4) J.Stoltenberg and O.E.Vilches: Phys. Rev. B22 (1980) 2920. R.Marx and B.Christoffer: Phys. Rev. Lett. 51 (1983) 790. R.Marx and B.Christoffer: Phys. Rev. B37 (1988) 9518.
- 5) M.F.Toney and S.C.Fain, Jr: Phys. Rev. B30 (1984) 1115. M.F.Toney and S.C.Fain, Jr: Phys. Rev. B36 (1987) 1248.