

マンガン酸化物の磁場誘起ステップ転移と圧力効果

Effect of pressure on field-induced steplike transition in manganese oxides

岩手大・工 大和義昭、村野 由、松川倫明 鹿児島大・理 小山佳一 東北大・金研 小林典男
物質・材料研究機構 二森茂樹 パリ南大学 R.Suryanarayanan、A.Revcolevschi

Y. Yamato¹, Y. Murano¹, M. Matsukawa¹, K. Koyama², N. Kobayashi³, S. Nimori⁴, R. Suryanarayanan⁵ and
A. Revcolevschi⁵

¹Faculty of Engineering, Iwate Univ., ²Faculty of Science, Kagoshima Univ., ³Institute for Materials Research,
Tohoku Univ., ⁴National Institute for Materials Science, ⁵Université Paris-Sud, France

1. はじめに

近年、磁場誘起のメタ磁性転移を示すマンガン酸化物系において、非常に鋭い磁化のステップが低温領域で報告されている。このステップ状の転移は、高温領域で観測されるブロードな転移とは定性的に異なる。この起源については、格子定数の異なる電荷整列反強磁性絶縁相と強磁性金属相の間のマルテンサイト変態によるものという解釈がなされている。しかし、2相の格子定数の不整合による解釈のみでは、説明できない点もある。

我々は、このステップ状の強磁性金属転移の起源を探るために、磁場誘起型絶縁体・金属転移を示す層状マンガン酸化物単結晶 $(\text{La}_{0.4}\text{Pr}_{0.6})_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ の磁歪・磁化及び磁気抵抗のステップ現象の研究を行ってきた。単結晶試料のデータから、常磁性絶縁体・強磁性金属転移に伴って、ステップ状の格子変化を観測した。また、鋭い一次相転移に伴う潜熱の発生が巨大熱磁気効果を伴うことを確認した。低温でのステップ転移については磁気的なフラストレーションが関係していると考えられる。

今年度は、擬立方晶マンガン酸化物 $\text{Eu}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x=0.42$) のステップ転移に対する圧力効果の実験を行った。また、2電子ドーピング型マンガン酸化物 $\text{Ca}_{1-x}\text{Ce}_x\text{MnO}_3$ の電場誘起抵抗変化の研究も行った。

2. 実験方法

イオン半径の小さい Eu イオン置換により一電子バンド幅を狭くした $\text{Eu}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 系は、すべてのキャリア濃度 x に対して絶縁体状態を示すことが知られている。特に、 $x=0.42$ 試料は、基底状態がスピン

グラス相であり、低磁場印加により絶縁体・金属転移を示す。図1に示したこの系の磁場温度相図は、Pr置換の層状マンガン酸化物の相図に類似しており、磁場誘起ステップ転移を示すと予想される有力な系である。多結晶試料は、固相反応法により作成した単相試料であり、x線回折データを最小2乗法によりフィットした結果、斜方晶構造(空間群 $Pbnm$)をとることがわかる。また、格子定数は、文献値とほぼ一致する。

磁化の測定は、岩手大学工学部金属材料保全センターの SQUID 磁束計を用いて行った。磁歪の測定は、歪みゲージ法により、東北大金研・強磁場センターの超伝導マグネットを利用した。磁化の圧力効果は、CuBe合金の圧力セルを使用して測定した。圧力較正は、Pb線の T_c の圧力依存性により実行した。また、磁歪の圧力効果の測定は、CuBe(外層)とNiCrAl合金(内層)からなる2層式セルを用いて行った。

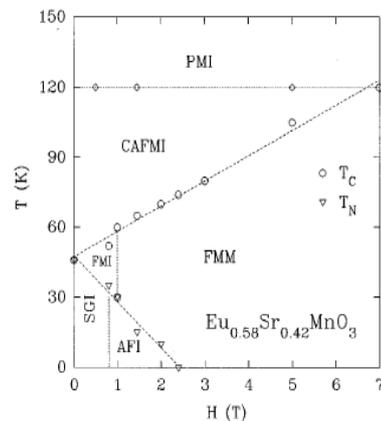


図1 $x=0.42$ 試料の磁場・温度相図

3. 実験結果及び考察

マンガン酸化物 $\text{Eu}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x=0.42$) の低温での等温磁化曲線を図2に示す。大気圧では、2.4T付近の印加磁場で磁化のステップ転移が観測された。この転移は同時に絶縁体・金属転移も伴うことが分かっている。転移後の飽和磁化の値は、Mn サイト当たり $3.3\mu_B$ でありほぼ強磁性状態である。また、相図から、転移以前の磁気状態は、スピングラス状態または反強磁性状態である。

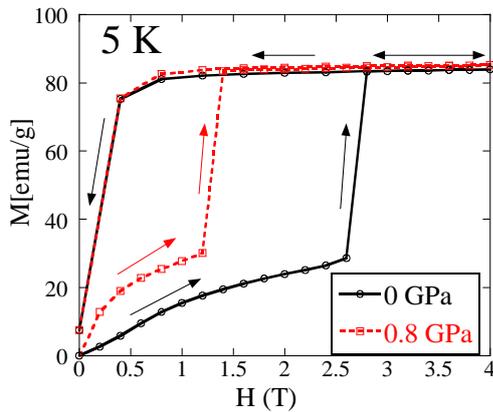


図2 磁化の圧力効果

一方、0.8GPaの圧力を印加すると、ステップを与える臨界磁場は、2.4Tから1.3Tに低下するが、飛びの値はあまり変化しない。これは、圧力印加により、Mnイオン間の距離が小さくなり、二重交換型の強磁性相互作用が強まったことに関係があると思われる。

次に、低温での磁気歪みの圧力効果の結果を図3に示す。大気圧では、2.6T付近で0.04%程度の格子の急激な収縮が観測されるが、圧力印加の場合、1.6Tに低下するが、体積減少の割合はおなじである。これらの振る舞いは、磁化の圧力効果の振る舞いと同様である。(磁場方向によらず、試料の長さは減少する) 低温での磁化のステップ現象は、試料の一部が局所的に磁場誘起転移を起こすと、発生した潜熱により、周りの部分系が励起される。その結果、連鎖反動的に、瞬間的に試料全体に拡大すると考えられ、磁気なだれ現象とも呼ばれている。一方、比較的高温では、熱励起により転移が促進されるため

に、連続的でブロードな転移を示す。

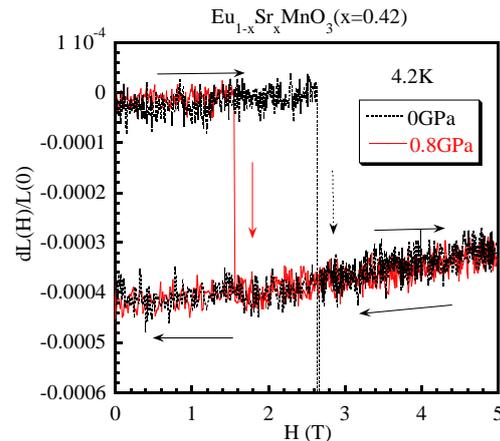


図3 磁歪の圧力効果

4. まとめ

擬立方晶マンガン酸化物 $\text{Eu}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x=0.42$) の磁場誘起ステップ転移に対する圧力効果の研究を行った。

- 1) 圧力印加により、磁化のステップ転移が起こる臨界磁場が小さくなる。これは、強磁性相互作用が強まったことに関係がある。
- 2) 磁歪の圧力効果は、磁化の振る舞いに対応している。(体積の減少は、0.1%程度)
- 3) 低温の基底状態がスピングラス相であることから、磁気的フラストレーションが重要な因子になっている。

参考文献

- 1) R.Mahendiran, et al., Phys.Rev.Lett.89,286602(2002).
- 2) A.Sundaresan, et al. Phys.Rev.B 55(1997)5596.
- 3) Y. Yamato, et al., Phys.Rev.B78,132411-1-4,(2008).
Y. Yamato et al., Journal of Physics, Conf. Series,150, 042121 (2009).
- 4) Y.Yamato et al., J. Phys. , Condens. Matter 21 (2009) 486001.
- 5) Y.Yamato et al., Applied Physics Letters 94,092507 (2009).
- 6) M.Matsukawa , et al., Phys. Rev. Lett., Vol.98, 267204-1-4, (2007).
- 7) Y. Yamato et al., J.Phys. D:Appl. Phys. 43 (2010) 145003.