

# マンガン酸化物の低温相分離状態の磁場中 X 線解析

X-ray diffraction analysis in high fields on the phase-separated state in manganese oxides

木村大地<sup>1</sup>, 千葉泰司<sup>1</sup>, 松川倫明<sup>1</sup>, 小林典男<sup>2</sup>, 高橋弘紀<sup>2</sup>, 渡辺和雄<sup>2</sup>

岩手大・工<sup>1</sup> 東北大・金研<sup>2</sup>

D. Kimura<sup>1</sup>, T. Chiba<sup>1</sup>, M. Matsukawa<sup>1</sup>, N. Kobayashi<sup>2</sup>, K. Takahashi<sup>2</sup>, K. Watanabe<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Faculty of Engineering, Iwate Univ., <sup>2</sup>Institute for Materials Research, Tohoku Univ.

## 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に付随した凍結した相分離状態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  $(\text{Eu}_{1-x}\text{Gd}_x)_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  ( $x=0,0.1$ ) の磁場誘起ステップ転移に対する圧力効果の実験を行った。また、磁場誘起強磁性転移に伴う格子定数の変化を強磁場 X 線回折装置により研究した。

## 2. 実験方法

狭いバンド幅を有する  $\text{Eu}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  系は、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。多結晶試料は、固相反応法により作成した单相試料であり、x 線回折により方

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。Gd 置換試料は、化学圧により、格子歪が導入された結果バンド幅が狭くなり、またランダムネス効果も期待される。

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 Tc 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。磁場印加時の格子定数は、強磁場センターの強磁場 X 線回折装置を用いて調べた。(この装置は故障のため、1 度使用したのみである。)

## 3. 実験結果及び考察

マンガン酸化物 Gd 置換  $\text{Eu}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  の低温での等温磁化曲線を図 1 に示す。

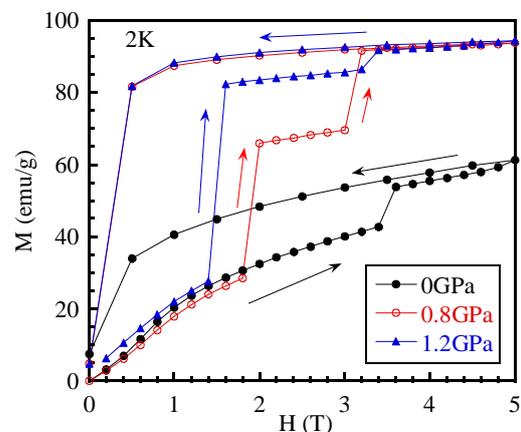


図 1 圧力下の等温磁化曲線

Gd イオンで置換した試料の等温磁化曲線は圧力印加によりステップ状の転移は増強される。特に、Gd 置換試料のトラレンス因子(一電子バンド幅に対応)は、圧力印加により母物質のそれに近づくことがわかる。一方、Gd 置換によるディスオーダーの増加により、低温でマルチステップ転移が観測された。この転移は、試料の原子レベルの不均一性に起因していると思われる。磁気転移に付随して体積の急激な減少が観測された。最後に、磁場誘起ステップ転移の起源は、低温零磁場基底状態が凍結した相分離状態にあることが重要である。また、臨界磁場の温度勾配が低温に向かって負の値を示すことが、磁気雪崩現象を引き起こす要因となっている。

次に母物質の 10K での磁場中 X 線回折測定の結果を図 2 に示す。また、図 3 に  $2\theta=70^\circ$  付近の拡大したプロファイルを示す。

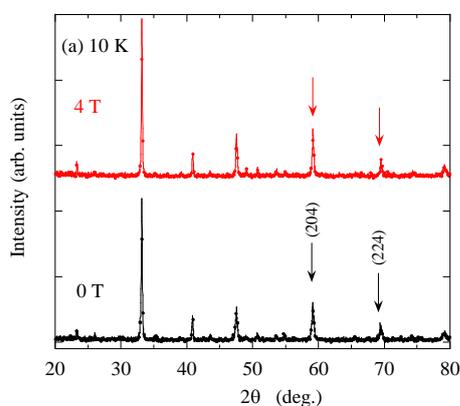


図 2 磁場中 X 線回折測定結果

この測定結果は、磁場誘起強磁性転移に伴って構造相転移は起きておらず、格子定数の減少(または体積の収縮)を示唆する。4T の磁場印加により、 $3.4 \times 10^{-4}$  の格子定数の減少が見積もられる。この結果は、磁気歪の測定結果とほぼ一致する。磁場を零に戻しても格子定数は緩和せずヒステリシスを示す。

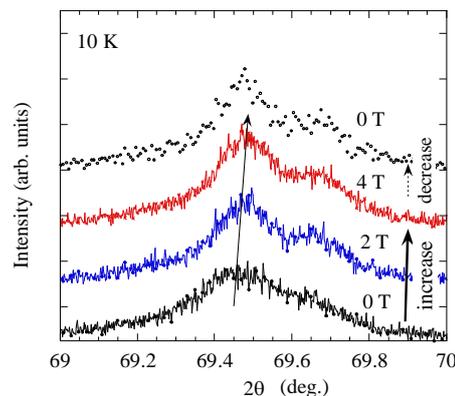


図 3  $70^\circ$  付近の反射ピークの磁場変化

#### 4. まとめ

昨年度の引き続き基底状態が凍結した相分離状態にある Gd 置換(Eu,Sr)系擬立方晶マンガン酸化物の低温等温磁化及磁歪の圧力効果及び磁場中 X 線回折プロファイルを測定した。

- 1) Gd 置換試料の等温磁化曲線に対する圧力印加により、ステップ状の振る舞いは低磁場側に移行する。また、低温でマルチステップ転移が観測された。
- 2) 磁場中 X 線回折測定の結果は、磁場誘起強磁性転移に伴って構造相転移ではなく、格子定数の減少(または体積の収縮)を示唆する。これは、格子歪を引きずった局在したキャリアが、磁場により融解し遍歴的な振る舞いを示したことに関係する。

#### 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., Applied Physics Letters 94,092507 (2009).
- 5) M. Matsukawa, et al., Phys. Rev. Lett., Vol.98, 267204-1-4, (2007).
- 6) T. Inomata et al., arXiv:1106.2222v3.