

層状マンガン酸化物単結晶の磁場誘起型ステップ転移

Field-induced steplike transition of bilayered manganite single-crystal

岩手大・工 大和義昭、村野 由、松川倫明 東北大・金研 小山佳一、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. Yamato^A, Y. Murano^A, M. Matsukawa^A, K. Koyama^B, N. Kobayashi^B, S. Nimori^C, R. Suryanarayanan^D and

A.Revcolevschi^D

^AFaculty of Engineering, Iwate University ^BInstitute for Materials Research, Tohoku University

^CNational Institute for Materials Science ^DUniversité 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いる。今年度は、ステップ状の転移を外部変数（圧力と電流）の関数として研究を実施した。

2. 実験方法

$(\text{La}_{1-z}\text{Pr}_z)_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ 試料は、南パリ大学で FZ 法により作製された良質単結晶であり、その寸法は $2.8 \times 3.4 \text{ mm}^2$ (ab 面) 及び 1.0 mm (c 軸) である。母物質 ($z=0$) は、 $T_c \sim -126 \text{ K}$ 以下で、常磁性絶縁相から強磁性金属相に転移する。La サイトをイオン半径の小さい Pr で置換した試料はパラメータ空間においてキャリア濃度 ($x=0.4$) を一定に保ち、一電子バンド幅を小さくして T_c をさげることに対応する。 $z=0.2$ の試料の場合、 $T_c \sim -90 \text{ K}$ に低下する。 $z=0.6$ の試料は低温においても常磁性絶縁相である。

磁気抵抗及び磁歪の測定は、直流四端子法及び歪

みゲージ法により、東北大金研・強磁場センター及び物質・材料研究機構の超伝導マグネットを利用した。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。

3. 実験結果及び考察

$(\text{La}_{0.4}\text{Pr}_{0.6})_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ 単結晶の低温での磁気歪み、磁化及び磁気抵抗の測定を実行した。磁場印加 (H/c 軸) とともに、5T 付近で磁場誘起型絶縁体・金属転移に伴う急激な c 軸方向の試料の収縮が観測される。このステップ状の変化は、高温領域 (10K 以上) で観測される連続的な転移とは、本質的に異なる。転移幅は、数ミリテスラのオーダーであり、臨界磁場の 0.1% 以下である。

次に、磁歪ステップの圧力効果の結果を図 1 に示す。圧力印加により、ステップ状の振る舞いは抑えられ、高温側で観測されるブロードな変化に置き換わる。この結果は、圧力効果が強磁性相互作用を強めることにより、ステップ状の変化を抑制したものと考えられる。また、磁場中冷却後に試料の強磁性転移は促進されるが、ステップ状の変化が抑制されるという以前の結果と一致している。

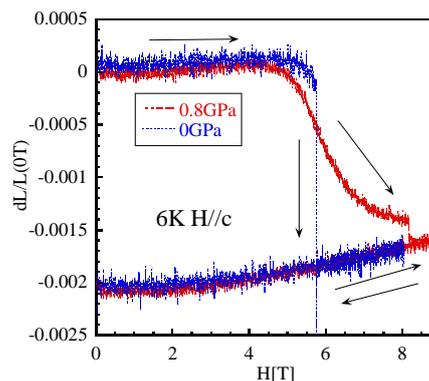


FIG.1 c-axis magnetostriction under both ambient pressure and a hydrostatic pressure of 0.8GPa at 6K.

次に、外部変数を電流に設定し、一定電流を印加して磁歪の測定を行った。また、比較のために磁気抵抗効果の電流値依存性を測定した。図2及び図3からわかるように、2mA程度の高い電流値の場合には、ステップ状の鋭い変化は、ブロードな連続的な変化へ移行する。これに対応して、磁気抵抗の振る舞いも同様に变化する。ジュール発熱による試料発熱の影響は無視できる。

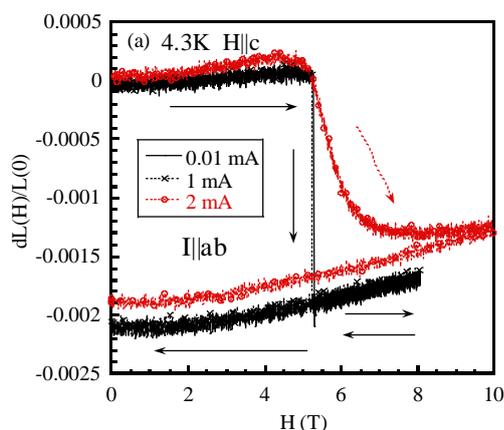


FIG.2 c-axis magnetostriction as a function of the applied current at 4.3K (H||c).

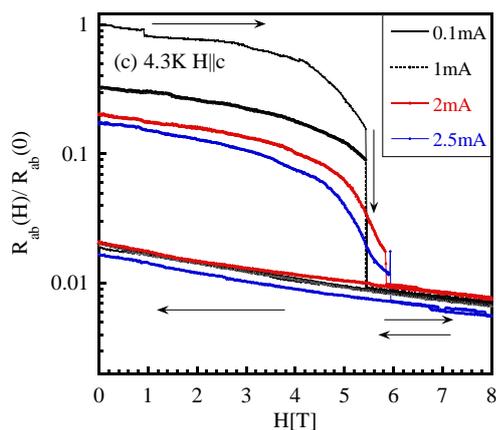


FIG.3 ab-plane magnetoresistance as a function of the applied current at 4.3K (H||c).

また、零磁場での試料抵抗が低電流の場合に比べ2mAの電流を印加すると80%程度減少する。電流印

加による電気抵抗の著しい低下は、CER (colossal electroresistance effect) 効果としてマンガ氧化物では報告されている。

この系の基底状態は、不均一な常磁性相であり、母物質の常磁性相に関する中性子回折実験から、短距離型の電荷整列(CO)クラスターの存在が示唆されている。従って、常磁性相マトリックス中に分散しているCOクラスターが、電流印加により融解しキャリアが遍歴的になったものと考えられる。

また、COクラスター間の軌道フラストレーションは、電荷整列を妨げその結果常磁性相が発現しているという主張もなされている。ステップ転移の起源は解明されていないが、圧力や電流印加によるバースト的な変化の抑制は、COクラスターの融解と関係していると予想される。これまでの立方晶マンガ氧化物の研究から、COドメインのサイズが小さいことがステップ状の変化に好ましい条件であることが示唆されている。この事実はこの系における常磁性相マトリックス中に分散しているCOクラスターの存在とも結びつく。

4. まとめ

磁場誘起型絶縁体・金属転移を示す層状マンガ氧化物 ($\text{La}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}$) $_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ 単結晶のステップ転移を外部変数(圧力、電流)の関数として研究した。

- 1) この鋭い変化は、強磁性金属転移を伴う一次相転移であり、転移幅は、数ミリテスラ程度の鋭い変化を示す。試料の瞬間的な温度上昇は15Kにも達する。(巨大磁気熱量効果)
- 2) 圧力印加により、ステップ状の振る舞いは抑えられ、高温側で観測されるブロードな変化に置き換わる。同様な振る舞いが電流印加の場合も観測された。
- 3) 従って、基底状態が不均一な常磁性相(グリフィス相の一種)とすれば、この急激な変化は、電荷整列クラスターの存在と関連すると予想される。詳細は参考文献の一部記述されている。

参考文献

- 1) R.Mahendiran, et al., Phys.Rev.Lett.89,286602(2002).

- 2) M. Matsukawa, Y. Yamato, T. Kumagai,
A. Tamura, R. Suryanarayanan, S. Nimori, M. Apostu,
A. Revcolevschi, K. Koyama, and N. Kobayashi,
Phys. Rev. Lett. 98, (2007) 267204.
- 3) Y. Yamato, M. Matsukawa, T. Kumagai,
R. Suryanarayanan, S. Nimori, M. Apostu, A. Revcolevschi,
K. Koyama, and N. Kobayashi, Phys. Rev. B 78, (2008)
132411.
- 4) S. Mercone, A. Wahl, Ch. Simon, and C. Martin,
Phys. Rev. B 61, 15269 (2000).
- 5) D. N. Argyriou, J. W. Lynn, R. Osborn, et al.,
Phys. Rev. Lett. 89, 036401 (2002).
- 6) Y. Yamato, M. Matsukawa, Y. Murano, R.
Suryanarayanan, S. Nimori, M. Apostu, A. Revcolevschi,
K. Koyama, N. Kobayashi, Applied Physics Letters
94, 092507 (2009).