

マンガン酸化物の凍結した相分離状態の圧力効果

Effect of pressure on the frozen phase separated state in manganese oxides

岩手大・工 猪股 佑、大内修也、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

T. Inomata¹, S. Ohuchi¹, M. Matsukawa¹, K. Koyama², N. Kobayashi³, S. Nimori⁴, R. Suryanarayanan⁵

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} $\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ ($x=0,0.1$) のステップ転移に対する圧力効果の実験を行った。また、電子ドーピング型マンガン酸化物 $\text{CaMn}_{1-x}\text{Sb}_x\text{MnO}_3$ の磁気及び輸送特性に対する圧力効果の研究も行った。

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。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。

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。

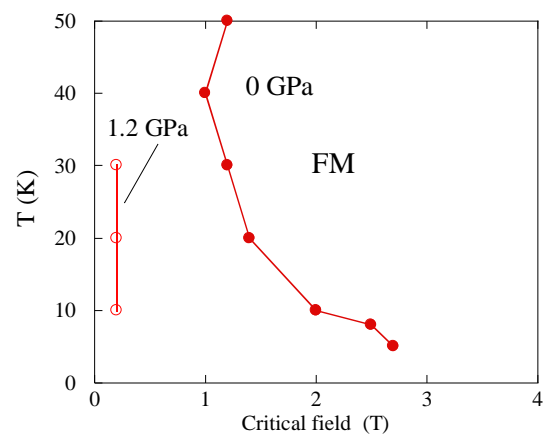


図1 母物質の磁場・温度相図

3. 実験結果及び考察

マンガン酸化物 $\text{Eu}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ 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。

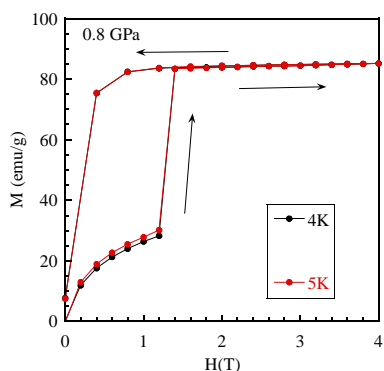


図2 圧力下の等温磁化曲線

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。母物質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。さらに1GPa以上の高圧印加により、ステップ状の磁化の振る舞いは消失する。一方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。これらの結果は、元素置換や圧力印加により一次相転移から二次相転移への交差が起きていることや凍結した相分離状態の解放などによって説明が可能である。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。また、一次転移から二次転移への移行により、体積の減少は消失した。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。

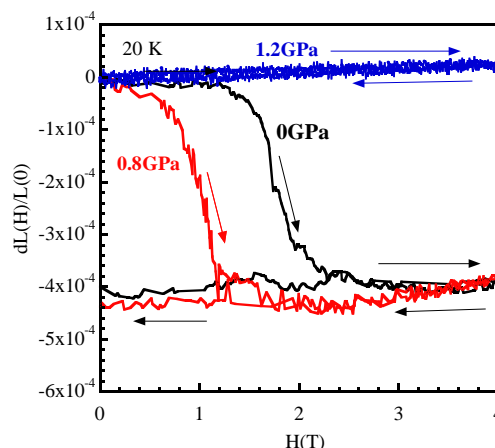


図3 磁歪の圧力効果

4. まとめ

基底状態が凍結した相分離状態にあるGd置換(Eu,Sr)MnO₃擬立方晶マンガン酸化物の低温等温磁化及び磁歪の圧力効果を測定した。

1) 母物質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。さらに1GPa以上の高圧印加により、ステップ状の磁化及び磁気歪の振る舞いは消失する。

2) 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関係があることが、圧力効果の研究からも示唆される。

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.Y amato et al., Applied Physics Letters 94,092507 (2009).
- 5) M. Matsukawa, et al., Phys. Rev. Lett.,98, 267204-1-4, (2007).
- 6) T. Inomata et al., arXiv:1106.2222v1.
- 7) Y. Murano et al., Phys. Rev. B 83(2011)054437.
Y. Murano et al., Journal of Physics Conf. Series 200, 012114 (2010).