

新規機能性材料の圧力効果に対する微視的研究

Microscopic study for the effect of pressure in new smart materials

掛下知行¹⁾ 福田 隆¹⁾ 寺井智之¹⁾ 串田悠彰¹⁾ 山下真吾¹⁾ 榎野寛之¹⁾ 長壁豊隆²⁾

Tomoyuki KAKESHITAT akashi FUKUDA Tomoyuki TERAJ Hiroaki KUSHIDA Shingo YAMSHITA Hiroyuki KAYANO Toyotaka OSAKABE

¹⁾大阪大学 ²⁾原子力機構

新規機能性材料 $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ($x=0.315$) の大気圧および静水圧下 ($P=0.4\text{GPa}$) における中性子回折を行い、その磁気構造を明らかにした。

キーワード：マンガン酸化物、磁気転移、軌道整列、圧力誘起相変態、超巨大磁気抵抗

1. 目的

層状ペロブスカイト型マンガン酸化物 $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ の電氣的・磁氣的に特異な現象は、Mn イオンの $3d$ 電子の持つ電荷、スピン、軌道の自由度の間の強い相関により発現することが知られている。特に磁気相転移に関しては、各磁気構造と軌道の自由度の間に相関があることがこれまでの研究において示唆されている。この軌道の自由度は MnO_6 八面体の歪により制御することができる[1]。そこで静水圧負荷により MnO_6 八面体を歪ませた場合の磁気構造を調査することにより、軌道の自由度と磁気構造の関係について知見を得ることが期待できる。昨年度の研究により、層状ペロブスカイト型マンガン酸化物 $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ($x=0.315$) は $P=0.8\text{GPa}$ の静水圧下において大気圧下より高い温度まで磁気モーメントの c 軸成分が存在することを確かめた。また、約 80K から 110K の温度範囲において反強磁性相が現れることがわかった。本年度はこの反強磁性相についてより詳細に調査するため、 $P=0.4\text{GPa}$ の静水圧下および大気圧下において中性子回折実験を行い、 $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ($x=0.315$) の静水圧負荷による磁気構造の変化を明らかにし、 MnO_6 八面体の歪と磁気構造の関係についてさらなる知見を得ることを目的とする。

2. 方法

$\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ($x=0.315$) 単結晶を $P=0.8\text{GPa}$ の静水圧を負荷しながら中性子線回折測定を行い、圧力および温度と結晶構造の関係を調べた。具体的には $60\text{K}\sim 120\text{K}$ の温度範囲において、007, 008, 009, 0012, 100, 101, 102, 104, 105, 106, 108, 109, 200, 201, 203, 206, 1010 の各逆格子点の散乱強度を測定した。核散乱を示す逆格子点については、各温度の散乱強度から常磁性を示す温度 ($T=120\text{K}$) の散乱強度を差し引いた値を磁気散乱強度とした。

3. 研究成果

得られた各磁気反射の強度より、 $\text{FM}_{\text{uniaxial}}$ 構造 (c 軸方向に磁化容易軸を持つ強磁性構造)、 $\text{FM}_{\text{planar}}$ 構造 (ab 面内方向に磁化容易軸を持つ強磁性構造) および $\text{AFM}_{\text{planar}}$ 構造 (ab 面内方向に磁化容易軸を持つ反強磁性構造) の3つの磁気構造が存在することがわかった。それらの各磁気構造の存在量を Mn イオン一個あたりの磁気モーメントの大きさとして表すと Fig. 1 のようになった。図からわかるように大気圧および 0.4GPa の場合は温度の上昇に伴い、 $\text{FM}_{\text{uniaxial}}$ の量が減少して $\text{FM}_{\text{planar}}$ および $\text{AFM}_{\text{planar}}$ が増加する。そして約

90 Kにおいて FM_{uniaxial} は消失し、 FM_{planar} および AFM_{planar} は最大になる。さらに約 120 Kにおいて FM_{planar} および AFM_{planar} も消失する。一方、0.8 GPa の場合は温度の上昇に伴って FM_{uniaxial} が減少し、約 105 Kにおいて FM_{uniaxial} は消失する。 AFM_{planar} は温度上昇に伴い増加し約 95 Kにおいて最大になり、約 120 Kにおいて消失する。これらの結果のうち複数の磁気構造が共存している温度領域では、磁化測定より求めた自発磁化の大きさとの比較により、単一の磁気構造を持つ 2 相ないし 3 相の共存状態ではなく、キャント反強磁性の単一の磁気相であることがわかった。以上の結果を考慮して決定した磁気相図を Fig. 2 に示す。図の CAFM-I 相は FM_{uniaxial} 、 FM_{planar} および AFM_{planar} 構造が組み合わさった相、CAFM-II 相は FM_{planar} および AFM_{planar} 構造が組み合わさった相、CAFM-III 相は FM_{uniaxial} および AFM_{planar} 構造が組み合わさった相を示しめている。

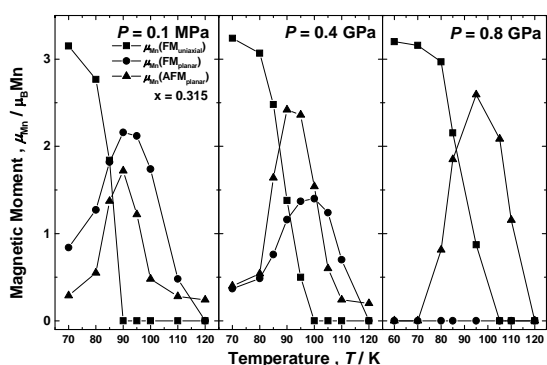


Fig. 1 各圧力における FM_{uniaxial} 構造、 FM_{planar} 構造および AFM_{planar} 構造の Mn イオン 1 個あたりの磁気モーメント μ_{Mn} の温度依存性 ($P=0.8\text{GPa}$ のデータは昨年度の研究により得られたもの)

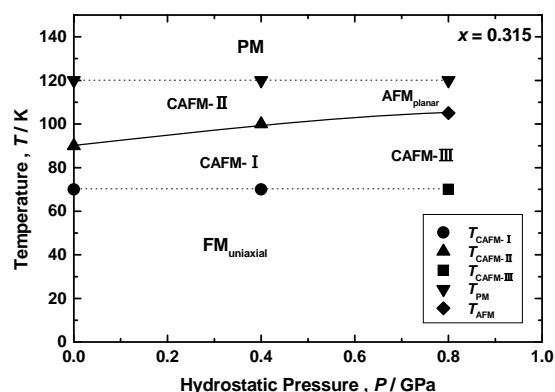


Fig. 2 $La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_2O_7$ ($x = 0.315$) の静水圧下における磁気相図

4. 結論・考察

Fig.2 が示すように静水圧が増加するにつれて磁気モーメントの c 軸方向成分がより高い温度まで存在しており、これは MnO_6 八面体の歪から予想される結果と一致し、 MnO_6 八面体歪と磁気構造の間に密接な関係があることが確かめられた。また、これまで大気圧下において FM_{planar} 構造をとると考えられていた相はキャント反強磁性を示すことが分かった。このことは、 MnO_6 二重層間に反強磁性的な相互作用が存在することを示している。この磁氣的相互作用の起源を明らかにすることは今後の課題である。

5. 引用(参照)文献等

[1] Y. Moritomo, K. Hirota, H. Nakao, T. Kiyama, Y. Murakami, S. Okamoto, S. Ishihara, S. Maekawa, M. Kubota, and H. Yoshizawa, Phys. Rev. B **62**, 17(2000).