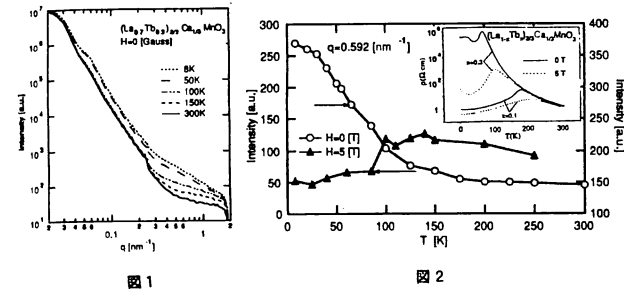
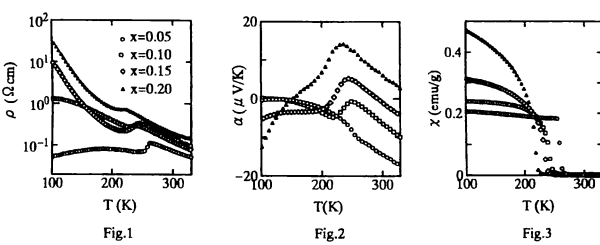


Mn化合物における巨大磁気抵抗効果は、多くの研究者の興味を集めている。(La_{1-x}Tb_x)_{2/3}Ca_{1/3}MnO₃において2重交換相互作用に起因するMnスピンの強磁性秩序が消失するx=0.3の場合、10⁴に及ぶ磁気抵抗が観察されている。そのメカニズムを明らかにする目的で、中性子小角散乱によってMnスピンの強磁性相関を測定した。図1に、X=0.3の試料について、磁場H=0の場合の中性子小角散乱パターンの動径積分の波数(q)依存性を示す。q > 0.2nm⁻¹に強磁性的な相関(相関長12nm)による散乱が観察されている。q=0.59nm⁻¹における散乱強度の温度依存性(図2)からわかるように、この強磁性相関は温度の低下とともに連続的に増加する。また5Tの磁場中では、室温から120K付近までは増加するが、より低温で緩やかに減少する。この振る舞いはゼロ磁場及び磁場中の電気抵抗の振る舞い(図2挿入図)と非常によく似ている。X=0.1の試料についても同様な強磁性相関が観察された。この強磁性相関は室温から温度を低下すると200K近傍の強磁性転移温度T_cで最大になり、より低温では磁気的な長距離秩序に伴って減少する。この試料の電気抵抗も磁気転移温度T_c=200 K付近で最大になり、両者の振る舞いは一致している。これらの実験結果は、巨大磁気抵抗効果の起源として、この化合物における強磁性相関が重要な役割を担っていることを示している。



3次元ペロフスカイト型マンガン酸化物La_{1-x}Ca_xMnO₃は、0.17 < x < 0.5の組成範囲で温度上昇に伴い強磁性金属相から常磁性絶縁体相へ相転移する磁性体である。特に、印加磁場において金属-絶縁体転移温度付近で巨大磁気抵抗効果を示す事から、その電磁気的磁性の起源に興味が続けられている。一般に強磁性金属相から常磁性絶縁体相へ相転移は二重交換相互作用によって説明されるが、金属-絶縁体転移温度付近での巨大磁気抵抗効果を説明する為にはt_{2g}-core spin disorderによって誘起されるポーラロン形成も考慮しなければならない。本研究では、x=1/3であるLa_{2/3}Ca_{1/3}MnO₃にRuを添加する事によってMn³⁺-Mn⁴⁺間の二重交換相互作用を制御し、La_{2/3}Ca_{1/3}Mn_{1-x}Ru_xO₃系における抵抗率、熱電能、及び磁化率の温度依存性を測定した。Fig.1に示すように、Ru添加に伴い抵抗率は増加し、0.10 < x < 0.15付近で金属相が崩壊する事が分かった。これはt_{2g}-core spin orderによるe_g電子の運動エネルギーの利得がRu添加によって妨げられている事を示唆している。しかし高温領域では全組成範囲でポーラロン形成に伴う熱活性化過程が確認された。この傾向はFig.2に示した熱電能の温度依存性にも顕著に現れており、高温極限での熱電能の絶対値が減少している事から、Ru添加はキャリアであるe_g hole濃度の減少を伴う事が期待される。また高温領域におけるFig.1とFig.2の活性化エネルギーの相違はスモールポーロンのホッピング伝導過程を示唆している。更に、Fig.3に示したように、ポーラロン形成に伴うホッピング伝導領域が各組成における常磁性領域に一致している事と、金属相の崩壊にも関わらず全組成範囲で強磁性-常磁性転移が認められる事から、高温におけるポーラロン形成は本質的に重要であると考えられる。当日は、Hall係数の温度依存性についての実験結果も含め詳細を報告する予定である。



筑波大物質工, 慶大理工^A, 物構研^B
 中村健二, 中澤昭則, 有馬孝尚, 若林裕助^{A,B}, 村上洋一^B
 Synchrotron x-ray study of charge- and orbital-ordering of Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃
 Inst. of Materials Science, Univ. of Tsukuba, Dept. of Phys. Keio Univ. ^A,
 Inst. of Materials Structure Science ^B
 K.Nakamura, A.Nakazawa, T.Arima, Y.Wakabayashi^{A,B}, Y.Murakami^B

La_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃における電荷・軌道整列の直接観察[1]が行われて以来、放射光 X線を用いたATS(Anisotropy of the Tensor of Susceptibility)散乱は、電荷と軌道の秩序状態を直接的に調べる手法として脚光を浴びている。今回我々はKEK-PFのBL-4CでNd_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃単結晶について同様の測定を行った。Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃は、150K近傍で電荷整列相転移に起因する金属-絶縁体転移、強磁性-反強磁性転移、構造相転移を同時に起こす。さらに電荷と共にe_g電子の軌道が空間的に整列することが予想されている。6Kで(010), (030), (0 $\bar{2}$ 0)等の超格子反射が観察された。これらの超格子反射は、低温から温度を上げていくと160K付近で消失した。さらに、反射強度のX線エネルギー依存性と偏光解析の結果から、(010)と(030)はFig.1に示すような電荷秩序状態からの反射で、(0 $\bar{2}$ 0)はb軸方向に倍周期の軌道秩序状態からの反射であることが示された。反射強度の散乱ベクトル回りの角度(アジマス角φ)依存性を測定した結果(Fig.2)、電荷整列からの反射(030)と、軌道整列からの反射(0 $\bar{2}$ 0)のどちらの強度も180°周期の変化が見られた。X線のエネルギーをMnの吸収端からずらすと、(030)反射強度のφ依存性の周期性は、ほとんどなくなった。この結果は、明らかにMn³⁺の散乱因子がテンソルとして振る舞うことを反映している。この電荷整列からの反射のφ依存性を調べることで、e_g軌道の形状を決定できる可能性が示唆される。

[1] Y.Murakami et al. Phys.Rev.Lett. 80 1932 (1998)

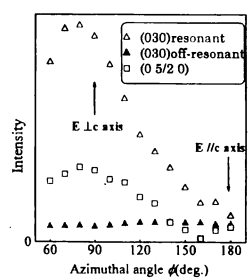
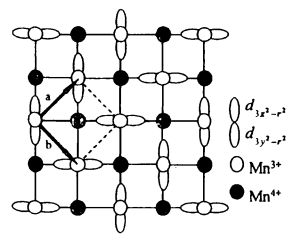


Fig.1 Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃の電荷・軌道整列状態

Fig.2 (030) (0 $\bar{2}$ 0)の強度のアジマス角依存性

電荷整列現象はペロフスカイト型Mn酸化物R_{1-x}A_xMnO₃(R=Nd, La, Pr, Nd, A=Sr, Ca)の特定のキャリア量において観測され盛んに研究されている。Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃は160K近傍において電荷整列現象を伴う強磁性金属相(FM)から反強磁性絶縁体相(AFM)への相転移が見られ、また同時に構造相転移も観測されている。このような多彩な物性を示すこの系において熱輸送の点から検討することは非常に興味深い。すでに我々のグループは、La_{1-x}Sr_xMnO₃系において強磁性転移温度(T_c)近傍において熱伝導率が極小になることを見出し、フォノン・スピン散乱の増大を報告した[1]。本講演では、FZ法で作製したNd_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃結晶について熱伝導率κ、熱拡散率α、熱起電力SをT_c及び電荷整列相転移温度T_{co}においてこれらの熱輸送係数の変化を測定した。熱伝導率は定常熱流法、熱拡散率は任意加熱法で10Kから300Kの範囲で測定を行った。図1に電気抵抗率と熱伝導率の関係を示す。270K付近の強磁性転移温度(T_c)において熱伝導率は他のMn系酸化物(La_{1-x}Sr_xMnO₃, La_{1-x}Ca_xMnO₃)と同様に極小を示した。また160K付近の電荷整列相転移温度(T_{co})では熱伝導率の急激な減少とヒステリシスが確認された。これは、電子熱伝導率の変化では説明できずT_{co}以下において電荷整列に伴う(例えば格子ひずみなどの)フォノン散乱が増大することを示唆している。図2に熱拡散率の温度依存性を示す。T_c付近で熱伝導率と同様に減少が見られた。C=κ/αの関係から算出した比熱にはT_{co}付近の異常は見られなかった。当日はx=1/2から変化した場合の結果についても報告する予定である。

[1] M. Ikebe, H. Fujishiro and Y. Konno. J.Phys.Soc. Jpn. 67(1998)1083

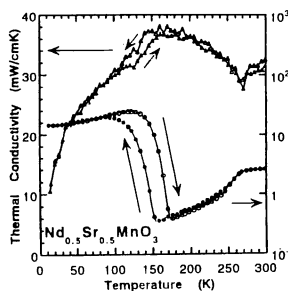


図1

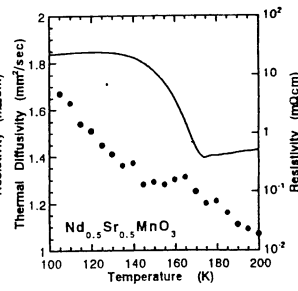


図2