

マルチフェロイック物質 RMn_2O_5 における圧力誘起磁気秩序と誘電性

研究代表者名

東北大学・多元物質科学研究所・木村宏之

研究分担者名

東北大学・多元物質科学研究所・野田幸男, 福永守, 東北大学・大学院理学研究科・山崎但, 坂本勇馬

1. はじめに

電気磁気効果 (ME 効果), 即ち磁場誘起による電気分極或は電場誘起による自発磁化, を示す物質は古くから存在していたが, その効果の大きさは, 実用化するにはあまりにも小さすぎた. しかし最近, 極めて大きな ME 効果 (Colossal Magnetoelectric effect; CME effect) を示す RmO_3 や RMn_2O_5 (R は Bi, Y, 希土類) という物質が発見され, 基礎科学, 応用科学の両面で大きな注目を浴びている. これらの系の特徴は, 強誘電転移温度と磁気秩序転移温度が極めて近く, また磁気伝播ベクトルの変化が誘電率, 電気分極の変化に密接に対応していることである. しかしながら, CME 効果の起源, 即ちスピンと電気分極 (原子変位) の相互作用の起源はまだ明らかにされていない.

2. 研究経過

これまでの研究で, 磁場誘起誘電転移は, 磁気相転移によって引き起こされる事が分かって来た. この系は結晶構造に起因する多数の競合する磁気相互作用が存在する. その為複数の磁気基底状態がエネルギー的に拮抗し, 複雑な磁気相転移を示す. 前年度の研究で, 圧力により $HoMn_2O_5$ の磁気相転移が制御でき, その結果誘電相転移が誘起される事を見いだした. 今年度はこの物質の圧力下中性子回折を用いて, この系の微視的磁性の温度—圧力相図の詳細を調べる事と, 圧力誘起磁気秩序相における磁気・結晶構造解析を行った. 更に金属材料研究所強磁場センターのマグネットを用いて, $TmMn_2O_5$ の磁場中誘電測定を行った.

3. 研究成果とまとめ

$HoMn_2O_5$ を用いて静水圧力下における磁気伝播ベクトルの測定を行った. この実験は金属材料研究所所有の中性子散乱装置 AKANE を用いて行われた. その結果, 圧力により, 格子不整合磁気相—格子整合磁気相の相転移が誘起される事を見いだした. さらに得られた圧力—温度相図は, 誘電性に関する圧力—温度相図と相境界が完全に一致する事や, 以前に得られている磁場—温度相図に極めて類似している事も発見した. この結果は, この系の磁気基底状態の起源や, CME 効果の起源を解明する上で重要な情報である. 更に圧力下結晶構造解析を行って圧力下での原子位置, 原子間距離, 結合角を詳細に求めた結果, 圧力誘起磁気秩序相転移において重要な寄与をする磁気相互作用が, どの原子間で働いているかを明らかにすることができた. この結果は, この系の電気磁気効果の微視的起源を明らかにする上で, 圧力が非常に重要なツールで有る事を示している.

$TmMn_2O_5$ を用いて磁場中の誘電測定を行った. その結果 0.6T という小さな磁場で電気分極の向きが a 軸 b 軸へと回転する事を発見した. この系で磁場誘起分極回転が発見されたのは世界で初めてであり, 4 状態メモリー実現の可能性という観点でも, 応用的に非常に重要な結果である.

f 電子系磁性材料の創成と圧力下における誘起物性

研究代表者名

金沢大学・理工研究域・大橋政司

研究分担者名

金沢大学・自然科学研究科・大石貴之

1. はじめに

希土類やアクチナイドを含む金属間化合物の中には電子スピンの起因する巨大磁気抵抗や巨大磁歪を持つ物質が数多くあり、その大きさは圧力で容易に制御できる。これは f 電子と伝導電子に起因するRKKY相互作用や近藤効果、および結晶電場効果等の競合により起こるものである。このような強相関電子系物質について、圧力を制御することによる新しい電子相や、圧力誘起量子相転移の探索が現在国内外で活発に行われている。我々はその中で、C15型ラーベス化合物 RT_2 、層状化合物 RTX_2 (R: f 電子を持つ金属, T: 遷移金属, X: Si, Ge, Sn), について単結晶の育成をおこない、特に低温高圧下において新奇物性の探索に取り組んでいる。

2. 研究経過

単結晶育成は東北大学金属材料研究所 α 放射対実験室のテトラアーク炉を用いておこなった。化学量論的に秤量されたものをはじめアーク溶解した。その後チョクラルスキー法を用いて単結晶を育成した。引き上げ速度は約0.2mm/min.であった。できあがった単結晶はサイズが約3.5-4.0mm ϕ の円柱形をしていた。得られた物質について、低温高圧強磁場の複合極限環境下において、電気抵抗、熱膨張、交流帯磁率等の物性測定を行った。

3. 研究成果

(1) $Ce_xLa_{1-x}Al_2$: これまで $x=1$ の系について各種物性測定を行い、 $P_C \sim 3\text{GPa}$ 近傍に圧力誘起量子相転移を示唆する結果を得た。この現象について、Ceの $4f$ 電子が及ぼす寄与を明らかにするために、La希釈系の単結晶($x=0.7$)を育成し、低温高圧強磁場の複合極限環境下において、電気抵抗測定をおこなった。近藤温度 T_K の圧力依存性から $x=1$ の系よりも低い圧力 $P_C < 3\text{GPa}$ に量子相転移が存在しそうである。今後より詳細な研究が望まれる。

(1) $Ce_xEr_{1-x}Al_2$: $CeAl_2$ は $T_N \sim 3.8\text{K}$ の反強磁性体、 $ErAl_2$ は $T_C \sim 15\text{K}$ の強磁性体である。 $Ce_xEr_{1-x}Al_2$ の x を制御する事による反強磁性—強磁性転移の探索を目的として、単結晶育成および各種物性測定を行った。電気抵抗、比熱、熱膨張、磁化率等の測定結果は、 $x=0.2$ 近傍においてスピングラス相の存在を示唆している。今後より詳細な研究が望まれる。

(3) $CePtSi_2$: この系は常圧で $T_N \sim 1.7\text{K}$ の反強磁性体である。 T_N は加圧とともに減少し、 1GPa 付近で消失する傾向が見られる。この近傍の圧力で詳細な物性測定をおこなった。電気抵抗率には結晶場効果の強い高濃度近藤化合物特有の振る舞いが見られた。高圧下の実験結果から、結晶場分裂の大きさ Δ は圧力によってさほど変わらないが近藤温度 T_K は増加する傾向にあると示唆された。 1.5GPa 付近で $\Delta \sim T_K$ となり、この圧力下では 0.3K 付近に超伝導が見つかった。他の重い電子超伝導体との比較により、この現象は価数の揺らぎに起因する圧力誘起超伝導である事が示唆される。転移圧力が比較的強く、比熱やNMR, dHvA効果などの各種物性測定が容易に測定出来るので、単結晶の育成や純良化する事により、今後さらなる研究の発展が期待出来る。

4. まとめ

本年度は $(Ce, X)Al_2$ (X=La, Er), $CePtSi_2$ の2つの系について圧力誘起量子相転移の探索をおこなった。どちらも高圧下で電気抵抗や帯磁率が大きく変化する、圧力に敏感な系である。今後 P_C 近傍におけるより詳細な測定から、圧力誘起超伝導など新奇物性の探索を試みる。