



桑原 英樹

上智大学 理工学部

プロフィール：1964年生まれ、兵庫県出身。関西学院大理学部物理学科卒、筑波大大学院理工学研究科修了。三洋電機筑波研究所、アトムテクノロジー研究体（JRCAT）研究員を経て、上智大学理工学部物理学科講師、同助教授、現在に至る。専門は強相関電子系物質の結晶成長と輸送特性測定。最近は子供と早起きの競争をして、健康的な生活を、と心がけてはいるのですが…。

スピン-電荷-軌道結合系における電子物性の磁場制御

要旨

この研究では「強相関電子系物質」である $3d$ 遷移金属複合酸化物に注目し、これに系統的な物質設計を施し、その電子物性を精密に測定することによって、新規電子物性の開拓、およびその物性の解明を目指した。ここでいう物質設計とは、物質から電子を抜いたり加えたり（キャリアドーピング）することや、電子の運動エネルギーを変化（バンド幅制御）させること、あるいは物質の結晶構造（次元性）そのものを変化させたりすることを指す。電子は、電荷とスピンの自由度を持ち、半導体エレクトロニクスでは電荷のみを、磁気工学ではスピンのみを情報担体として活用している。この研究の「強相関電子系物質」では、スピンと電荷の自由度に加えて、原子に束縛された電子が描く異方的な複数の軌道（電子雲）が第三の自由度として働き、結晶格子を歪めて電気抵抗を高くしたり、磁性や電気伝導に異方性を与えたりすることが期待される。「スピン-電荷-軌道」の3つ自由度は互いに結合し、その結合の強さは上記の精密な物質設計によって比較的自由に制御することができる。この「スピン-電荷-軌道」の3つが織り成す多彩で多様な複合現象が、電荷の自由度のみを用いている半導体材料には持ち得ない「強相関電子系物質」の潜在的能力・魅力と考えられる。この研究ではさらに、電子状態を磁場や電場、圧力などの外場の印加によって変革する—電子物性の外場制御—を試みた。

図1に示したように、反強磁性モット絶縁体に導入されたキャリアは電子同士が影響を及ぼし合いながらろうじて動き、通常の半導体のキャリアとは異なった電荷のみならずスピンの自由度も生き残った強磁性金属相（F）が出現している。この領域でいわゆる巨大磁気抵抗（CMR）効果が発見されている。この研究ではキャリアドーピング量をさらに増加させた試料を作製した。キャリア数を多くすると、強磁性金属相から電荷軌道整列絶縁体相（CE）を経て、さらにAタイプと呼ばれる、層状の反強磁性構造を持つ状態になることが分かった。特徴的なことは、反強磁性転移に伴い電気伝導に大きな異方性を示すことである。この大きな異方性の原因の一つに電子軌道による閉じこめ効果がある。 $3d_{x^2-y^2}$ 軌道が ab 面内に広がり、自身の運動エネルギーを稼ぎ、2重交換相互作用により強磁性金属層を形成し、一方 c 軸方向には軌道が伸びていないので、2重交換強磁性相互作用はクエンチされ反強磁性超交換相互作用により結合していると考えられる。

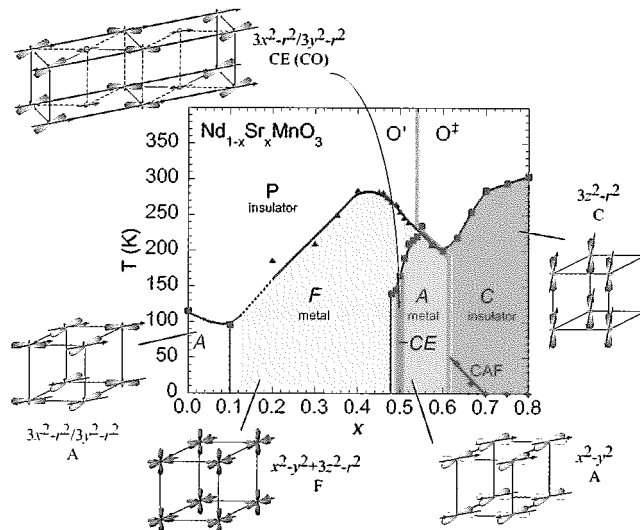


図1 $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 結晶の結晶構造・磁気構造・電子状態・電子軌道を示した相図

層状反強磁性磁気構造は、従来の反強磁性的に結合した金属多層膜を想起させる。従来Mn酸化物の常磁性-強磁性転移温度付近のごく限られた温度領域でのみ観測されている通常のCMR効果と大きく異なり、反強磁性転移温度 (T_N) 以下の広い温度範囲で実際に大きな負の磁気抵抗効果が観測された。これはc軸に磁場を印加すると面内に寝ていたスピンのc軸方向にキャントして、その強磁性成分の増加にともない得られていると考えられる。あるいは電子軌道の観点から言うと、ゼロ磁場では $3d_{z^2-y^2}$ に整列していた電子軌道が、磁場の印加によって $3d_{z^2-x^2}$ 成分が混成し、c軸方向にもホッピングできるようになったと言うこともできる。さらに、45Tまでのパルス強磁場を用いて、軌道・磁気秩序の安定性を検討した(図2)。 T_N 直下から最低温までメタ磁性転移とそれに伴う急激な電気抵抗の減少が観測された。すなわち外部磁場によって層状反強磁性秩序とそれと協同的に起こる2次元的な $3d_{z^2-x^2}$ 軌道整列状態から等方的な3次元強磁性金属状態に1相転移することが明らかとなった。言い換えると磁場印加により軌道液晶状態から軌道液体状態に変化させることができたと言うこともできる。

さらにキャリアドーピングを進めると、 $0.63 \leq x$ の領域では、液晶のネマチック相のようにc軸方向に一軸性をもったロッド状の軌道 ($3d_{z^2-x^2}$ 軌道) が整列していることが期待され、現在検証中である。このようにキャリア数の精密な制御によってスピン構造、電子状態の変革に加えて電子軌道の状態を固体から液体さらに液晶状態と自由に変革させることが明らかになった。またそれらの状態は外部磁場によって制御(磁場誘起相転移)可能であることを示した。

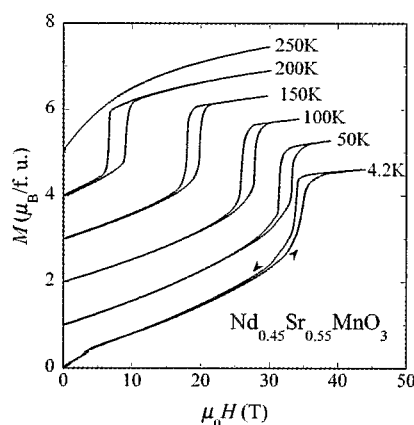


図2 軌道整列・層状反強磁性体 ($x = 0.55$) の磁化過程

研究成果

発表論文

1. "Field induced orbital order-disorder transition in an A type antiferromagnetic manganite: high field study of $\text{Nd}_{0.45}\text{Sr}_{0.55}\text{MnO}_3$ " T.Hayashi *et al.*:submitted.
2. "Resistive Anomaly Relevant to Nd Moments in the Antiferromagnetic Phase of the Bandwidth-Controlled Manganites" H.Kuwahara *et al.*: Mater. Res. Soc. Symp. Proc., Vol., **658** (in press).
3. "X-ray diffraction scattering from $(\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x)_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ and $\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ " S.Shimomura *et al.*: AIP Conf. Proc. **554**, 437 (2001).
4. "Nonlinear magneto-optical properties of colossal magnetoresistive manganites" M.Fiebig *et al.*: Phys.Rev. Lett. **86**, 6002 (2001).
5. "Orbital-ordering-induced anomalous softening of the ferromagnetic spin waves in perovskite manganites" R.Kajimoto *et al.*: J. Magn. Magn. Mater. **226-230**, 907 (2001).
6. "Local magnetic states in $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ and $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ with $x = 0.5$ " S.Imada *et al.*: Physica **B 281-282**, 498 (2000).
7. "Critical Spin Dynamics in $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ with $x \sim 0.5$ " V. V. Krishnamurthy *et al.*: Phys. Rev. **B 61**, 4060 (2000).
8. "Two-dimensional charge-transport and spin-valve effect in the layered antiferromagnet $\text{Nd}_{0.45}\text{Sr}_{0.55}\text{MnO}_3$ " H.Kuwahara *et al.*: Phys.Rev.Lett.**82**, 4316 (1999).
9. "Orbital-State-Mediated Phase-Control of Manganites" Y. Konishi *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 3790 (1999).
10. "X-ray Diffraction Scattering due to Polarons in a Colossal magnetoresistive manganite" S. Shimomura *et al.*: Phys. Rev. Lett. **83**, 4389 (1999).
11. "Hole-Concentration-Induced Transformation of the Magnetic and Orbital Structure in $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ " R.Kajimoto *et al.*: Phys. Rev. **B 60**, 9506 (1999).