

Pr-Ca-Co-O における金属・絶縁体転移への磁場効果 Effect of magnetic field on metal-insulator transition in Pr-Ca-Co-O

岩手大・工 内藤 智之、藤代 博之
 東北大・金研 西崙 照和、小林 典男

T. Naito¹, H. Fujishiro¹, T. Nishizaki² and N. Kobayashi²

¹ Faculty of Engineering, Iwate University

² Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

Pr-Ca-Co-O において温度の低下にともない 3 価の Co イオンが中間(もしくは高)スピン状態から低スピン状態へ転移すると同時に金属・絶縁体転移 (以下、MI-SS 転移) が起こることが知られている[1]。我々は、これまで Pr サイトを Nd, Sm, Gd および Y で置換した試料を作製して MI-SS 転移を詳細に調べてきた[2]。Nd 置換試料以外では MI-SS 転移が発現し、その転移温度はトランス因子(結晶構造の歪度を示す)、A サイトの平均イオン半径やランダムネスでほぼ整理できることを明らかにしてきた。現時点で Nd 置換試料において MI-SS 転移が発現しない理由は明らかになっていない。本研究では、Pr-Ca-Co-O 系の磁場中電気抵抗率および磁化率測定を行い、MI-SS 転移への新しい知見を得ることを目的とする。

2. 実験方法

測定試料($\text{Pr}_{1-y}\text{RE}_y$)_{0.7}Ca_{0.3}CoO₃(RE は Pr 以外の希土類元素)は固相反応法で作製した。混合した原料粉末を先ず 1000°C の空气中で 24 時間仮焼きした。仮焼き粉末を粉砕・混合し、一軸加圧下で直径 20mm、厚さ 5mm のペレットに成型した後、1200°C の酸素気流中で 48 時間焼結を行った。作製した試料は粉末 X 線回折パターンから全て単相試料であることを確認した。電気抵抗率は直流四端子法で最大 15 テスラの磁場中で測定された。磁化率は SQUID 磁束計を用いて最大 5 テスラの磁場中で測定された。

3. 実験結果および考察

Fig.1(a)に($\text{Pr}_{0.8}\text{Sm}_{0.2}$)_{0.7}Ca_{0.3}CoO₃ の磁場中電気抵抗率の温度依存性を示す。零磁場では MI-SS 転移が 40.1K で観測された。7 テスラを印加すると MI-SS 転移温度は 35.5K に低下し、11 テスラ以上の磁場下で MI-SS 転移は消失した。Fig.1(b) と (c) に ($\text{Pr}_{0.875}\text{Gd}_{0.125}$)_{0.7}Ca_{0.3}CoO₃ と ($\text{Pr}_{0.89}\text{Gd}_{0.11}$)_{0.7}Ca_{0.3}CoO₃ の磁場中電気抵抗率の温度依存性をそれぞれ示す。($\text{Pr}_{0.875}\text{Gd}_{0.125}$)_{0.7}Ca_{0.3}CoO₃ の零磁場での MI-SS 転移温度は 59K であった。MI-SS 転移温度は 7 テスラまではほぼ

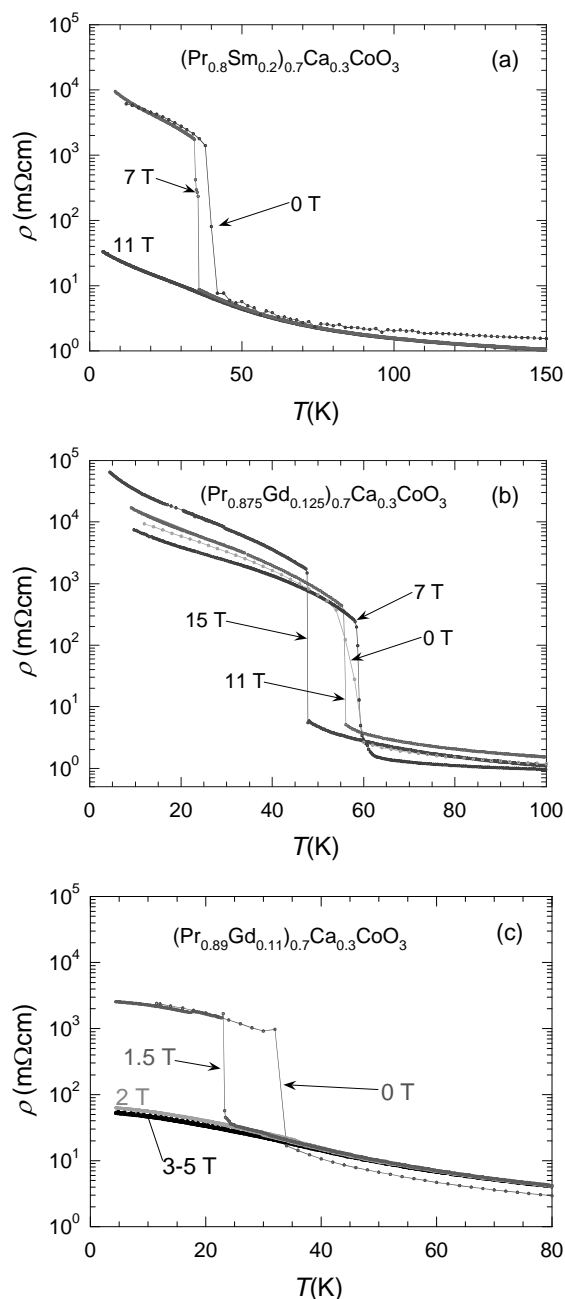


Fig.1: Temperature dependence of the resistivity of ($\text{Pr}_{0.8}\text{Sm}_{0.2}$)_{0.7}Ca_{0.3}CoO₃ (a), ($\text{Pr}_{0.875}\text{Gd}_{0.125}$)_{0.7}Ca_{0.3}CoO₃(b) and ($\text{Pr}_{0.89}\text{Gd}_{0.11}$)_{0.7}Ca_{0.3}CoO₃ (c) for various magnetic fields.

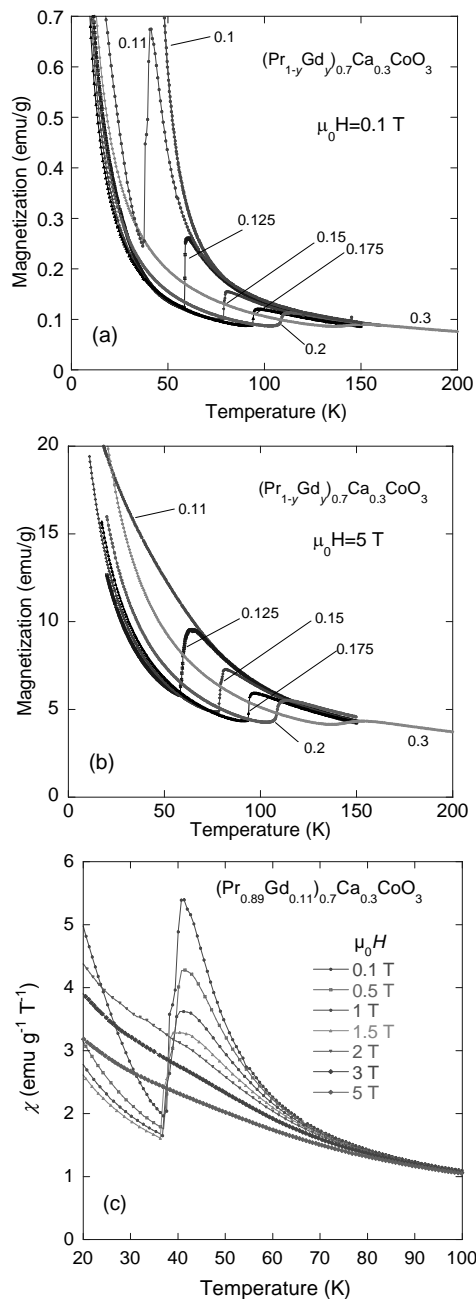


Fig.2: Temperature dependence of the magnetization of $(\text{Pr}_{1-y}\text{Gd}_y)_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{CoO}_3$ ($y=0.1-0.3$) at $\mu_0 H=0.1$ T (a) and 5 T (b), and of $(\text{Pr}_{0.89}\text{Gd}_{0.11})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{CoO}_3$ for various magnetic fields.

ほとんど変化しないが、11 テスラ以上では印加磁場の増加とともに低下した。しかし、最大印加磁場 15 テスラにおいても MI-SS 転移は消失しなかった。 $(\text{Pr}_{0.89}\text{Gd}_{0.11})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{CoO}_3$ の零磁場での MI-SS 転移温度は 33K であった。1.5 テスラで転移温度は 23.2K まで低下し、2 テスラで MI-SS 転移は完全に抑制された。

Fig.2(a)と(b)に $(\text{Pr}_{1-y}\text{Gd}_y)_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{CoO}_3$ ($y=0.1-0.3$) の印加磁場 0.1 テスラと 5 テスラにおける磁化の温度依存性

をそれぞれ示す。 $(\text{Pr}_{1-y}\text{Gd}_y)_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{CoO}_3$ は $y=0.11$ から MI-SS 転移を示し始める。磁化はキュリー則に従って温度の低下とともに単調に増加していき、MI-SS 転移温度で急激に減少した。その後再び単調に増加した。 $y=0.11$ 試料では、電気抵抗率と同様に 5 テスラの磁場によって MI-SS 転移は抑制された。それ以外の MI-SS 転移を示す試料において MI-SS 転移温度は磁場によってほとんど変化しなかった。Fig.2(c) に $(\text{Pr}_{0.89}\text{Gd}_{0.11})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{CoO}_3$ の磁化率の温度依存性 $\chi(T)$ を示す。 $\chi(T)$ は 1.5 テスラまでは MI-SS 転移を反映した不連続な振る舞いを示すが、転移温度はほとんど磁場依存性を示さなかった。2 テスラ以上でとびは消失した。2 テスラ以上で MI-SS 転移が磁場によって抑制されることは電気抵抗率で得られた結果と同様であるが、転移温度の磁場依存性が全く異なる。スピン転移は磁場の影響をほとんど受けず、金属・絶縁体転移はある閾値を超えた磁場領域では大きな影響を受けることが明らかになった。今回、 $(\text{Pr}_{0.89}\text{Gd}_{0.11})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{CoO}_3$ において磁場効果が顕著だった原因は、 $y=0.11$ が MI-SS 転移発現における臨界置換量であり、転移温度が低かったためと考えられる。

4. まとめ

Pr-Ca-Co-O 系で発現する金属・絶縁体-スピン状態転移の発現機構を明らかにする目的で、 $(\text{Pr}_{1-y}\text{RE}_y)_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{CoO}_3$ ($\text{RE}=\text{Sm}, \text{Gd}$) の磁場中電気抵抗率および磁化率を測定した。その結果、ある閾値以上の磁場下でこの転移が抑制されることが明らかになった。金属・絶縁体-スピン状態転移が観測される臨界置換量付近の組成を有する試料 ($(\text{Pr}_{0.89}\text{Gd}_{0.11})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{CoO}_3$) では、磁化率から見た転移温度は磁場の影響を受けないのに対して、電気抵抗率から得られた転移温度は磁場印加によって大きく低下することが観測された。今回得られた MI-SS 転移への磁場効果の結果は、Nd 置換では転移が生じない原因が Nd の磁性に起因する可能性があることを示唆している。

参考文献

- [1] S. Tsubouchi *et al.*, PRB **66** (2002) 052418
- [2] T. Naito *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 034710