

所属・資格 物理学科・准教授

申請者氏名 川上 隆輝

研究課題		A サイト秩序型ペロブスカイト鉄酸化物の圧力誘起のスピン転移による電気伝導性の変化の研究
報告の概要	研究目的 および 研究概要	A サイト秩序型ペロブスカイト鉄酸化物は、化学式 $AA_3B_4O_{12}$ と書け、A サイトにアルカリ土類金属や希土類元素、A'サイトに Cu, B サイトに Fe が入る。遷移金属の Cu と Fe は原子価を変えることができるため、Cu-Fe サイト間電荷移動が起こり磁氣的・電気的特性に変化が起こる。本研究で用いた $DyCu_3Fe_4O_{12}$ は、サイト間電荷移動($6Cu^{3+} + 8Fe^{3+} \rightarrow 6Cu^{2+} + 5Fe^{3+} + 3Fe^{5+}$)が大気圧から 10GPa まで起こり、10GPa より高压では鉄が 3 価と 5 価に分かれた電荷不均化した高スピン状態で安定する。さらに圧力を印加した 22GPa で高スピン-低スピン転移と同時に電荷不均化の抑制($5Fe^{3+} + 3Fe^{5+} \rightarrow 8Fe^{3.75+}$) が起こる。本研究では、スピン転移に伴う電気伝導に変化について調べてきた。
	研究の結果	A サイト秩序型ペロブスカイト鉄酸化物 $DyCu_3Fe_4O_{12}$ を高压下で電気抵抗測定を行うために、ダイヤモンドアンビルセルを用いて、大気圧から 61GPa まで圧力を印加して測定を行った。大気圧・低温で Fe は電荷不均化(Fe^{3+}, Fe^{5+})した 2 成分と大きな磁気モーメントを持った Fe^{3+} の 1 成分が高スピン状態で現れる。これら合わせた 3 成分は、Fe の 3d 電子が局在した状態にあるため、電気抵抗測定を行うと半導体的な電気伝導性を示す。圧力を印加すると結晶が圧縮されることで、電気伝導を担っている Fe の 3d 軌道 (特に e_g 軌道) と酸素(O)の 2p 軌道の混成が強まり、局所的だった Fe の 3d 電子が徐々に O の 2p 軌道を介して結晶全体を動けまわられるように遍歴化する。実際に、高压下で電気抵抗測定を行うと圧力の印加に伴って、半導体的な振る舞いから金属的な振る舞いに変化していく。スピン転移が起こる 22GPa の近傍では、室温の電気抵抗の圧力依存性に異常に見られた。それは、スピン転移と同時に電気抵抗の上昇がみられ、さらに圧力を印加すると減少に転じた。
	研究の考察・反省	六配位の状態にあると Fe の 3d の 5 重に縮退した軌道は、結晶場を受けて、エネルギー準位の高い順に 2 重に縮退した e_g 軌道と 3 重に縮退した t_{2g} 軌道に縮退が解ける。O の 2p 軌道とネットワークを作り電気伝導を担う軌道は e_g 軌道である。鉄が高スピン状態のときは、 e_g 軌道の電子が存在するため、加圧して体積を圧縮すると O の 2p 軌道との混成が強まり、電気を流しやすくなるが、スピン転移が起こって e_g 軌道の電子が電気伝導にあまり寄与しない t_{2g} 軌道に遷移すると、一旦、電気の流れが悪くなる。さらに加圧すると、 t_{2g} 軌道と O の 2p 軌道の混成が強まり、再び電気が流れやすくなる。スピン転移による室温の電気抵抗の圧力依存性の異常はこのように説明ができる。同じ構造を持ち異なる磁性を持つ物質と比べても、似た電気抵抗の振る舞いを見せたため、磁氣的な影響は少ないものと考察できる。
研究発表 学会名 発表テーマ 年月日/場所	※この欄は、本報告書提出時点で判明している事項についてご記入ください。 特になし	
研究成果物 テーマ 誌名 巻・号 発行年月日 発行所・者		