

# 希薄不純物置換 LaCoO<sub>3</sub> 系におけるスピン状態ポーラロン発現の条件と物質の探査 Investigation of Conditions and Materials for Emergence of Spin-State Polarons in lightly impurity doped LaCoO<sub>3</sub> systems

富安啓輔<sup>1\*</sup>, 久保田祐貴<sup>1</sup>, 下村紗耶<sup>2</sup>, 中尾裕則<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 東北大学 大学院理学研究科、〒980-8578 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3

<sup>2</sup> 東北大学 理学部、〒980-8578 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3

<sup>3</sup> 高エネルギー加速器研究機構 放射光科学研究施設、〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

ペロフスカイト型酸化物 LaCoO<sub>3</sub> (Co<sup>3+</sup>: d<sup>6</sup>) は、高・中間・低スピン状態という自由度を示す珍しい物質である。La サイトに Sr を 0.2 % ドープすると (ホールドープ)、10 μ<sub>B</sub>/hole 以上もの巨大磁気モーメントが発現する[1]。Sr をさらにドープしていくと、巨大磁気抵抗、異常ホール効果、絶縁体金属転移などを示す[2]。これらの現象の共通の起源は、スピン状態自由度に由来する「スピン状態ポーラロン」にあると考えられている[3]。スピン状態ポーラロンという概念は比較的新しく、発現機構も未だ解明されていないが、Co<sup>4+</sup>を核として周囲の Co<sup>3+</sup>を非磁性の低スピン状態から磁性の中間/高スピン状態へ変化させることにより生成するスピクラスタと提案されている (スピン分子 7 量体モデル) [3]。極低ホール濃度領域においては、互いに孤立したスピン状態ポーラロンが巨大磁気モーメントを伴う超常磁性を発現し、より高濃度領域においては輸送特性のキャリアを担うと期待される。

本研究では、スピン状態ポーラロンの発現機構の解明と、ホールドープとは異なる新種のスピン状態ポーラロンの創出を目指し、希薄不純物置換系 La(Co<sub>0.99</sub>M<sub>0.01</sub>)O<sub>3</sub> (M = Cr, Mn, Fe, Ni) における磁化測定、放射光による蛍光 X 線測定、中性子散乱を行った。ここでは放射光実験の部分を紹介する。

PF の BL-3A と 4C にて、室温の K 吸収端近傍の吸収スペクトルを測定した。入射光のエネルギーを各ドープ元素の K 吸収端前後で変化させ、1% という低濃度ドープ元素の価数を評価するため、各ドープ元素の K<sub>α</sub> 線または K<sub>β</sub> 線と K<sub>β</sub> 線のみを散乱光を検出した。測定には、La(Co<sub>0.99</sub>M<sub>0.01</sub>)O<sub>3</sub> (M = Cr, Mn, Fe, Ni) の単結晶、M<sup>3+</sup>の参照物質として LaMO<sub>3</sub> (M = Cr, Mn, Fe) と (LaSr)NiO<sub>4</sub> の多結晶ペレットを用いた。

図 1 は測定結果を示す。Cr ドープ系のスペクトルは LaCrO<sub>3</sub> と良く一致し、これは Cr が 3 価であることを示す。Mn と Fe ドープ系のスペクトルは LaMnO<sub>3</sub> と LaFeO<sub>3</sub> より約 2 eV 高エネルギー側にシフトし、これは Mn と Fe が 3 価から 4 価側にずれていることを示す。Ni ドープ系のスペクトルの吸収端エネルギー位置は (LaSr)NiO<sub>4</sub> とおおよそ一致し、これは Ni が 3 価であることを示唆する。

これらの価数評価の結果は、各ドープ元素の化学ポテンシャル (軌道/フェルミエネルギー) の大小と一致する。現在、スピン状態ポーラロンと化学ポテンシャルの関係を考察中である。

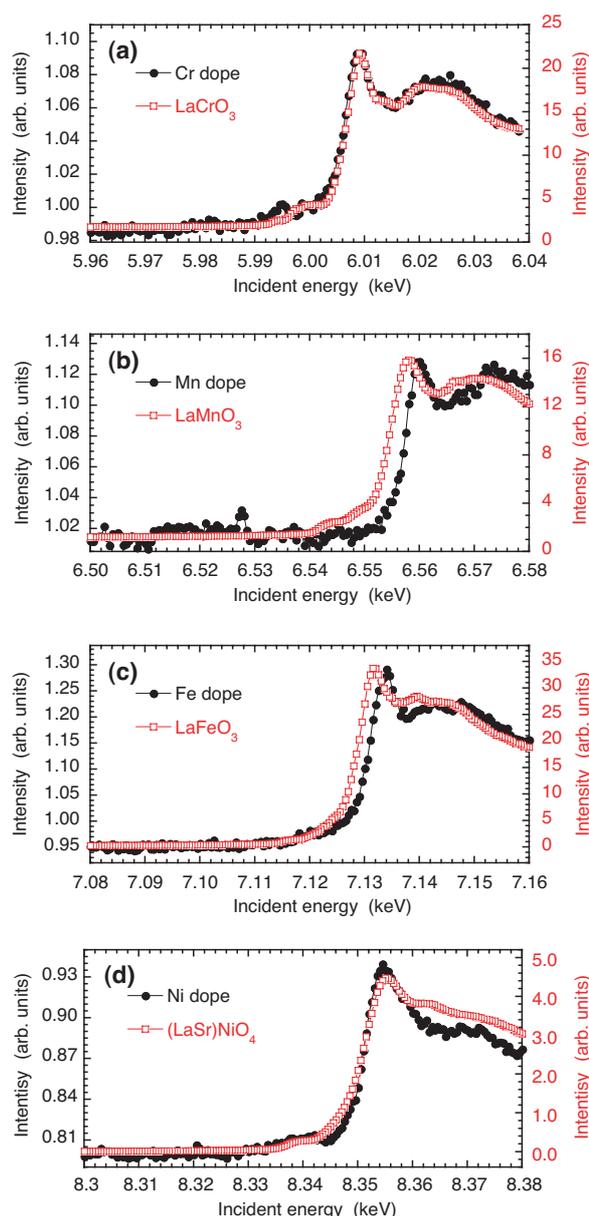


図 1 : K 吸収端近傍のエネルギースペクトル

## 参考文献

- [1] S. Yamaguchi *et al.*, PRB **53**, 6 (1996).
- [2] 例えば Y. Onose *et al.*, PRB **73**, 174421 (2006).
- [3] A. Podlesnyak *et al.*, PRL **101**, 247603 (2008).

\* tomiyasu@m.tohoku.ac.jp