

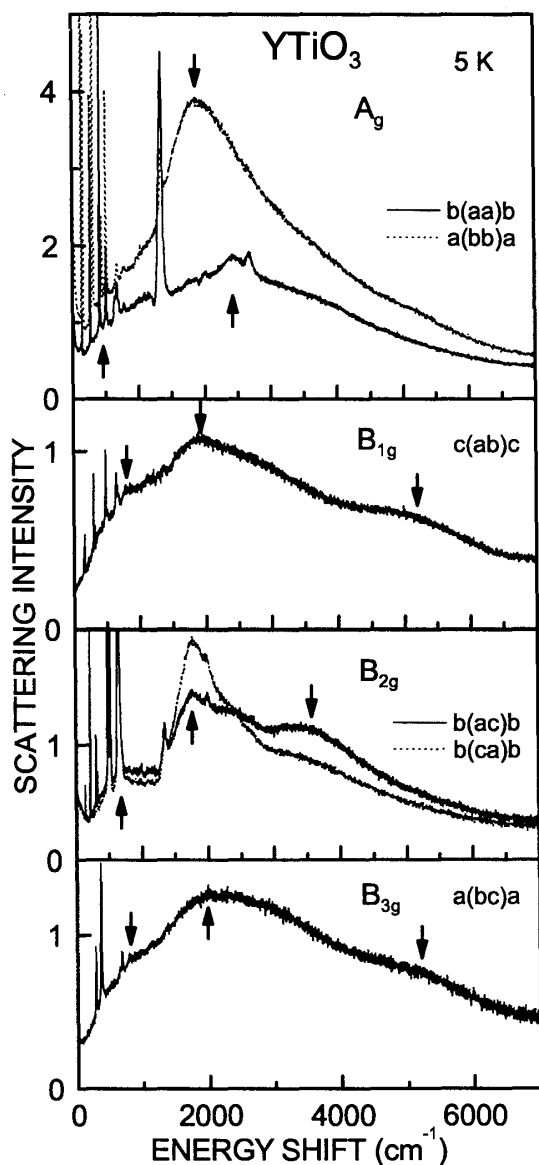
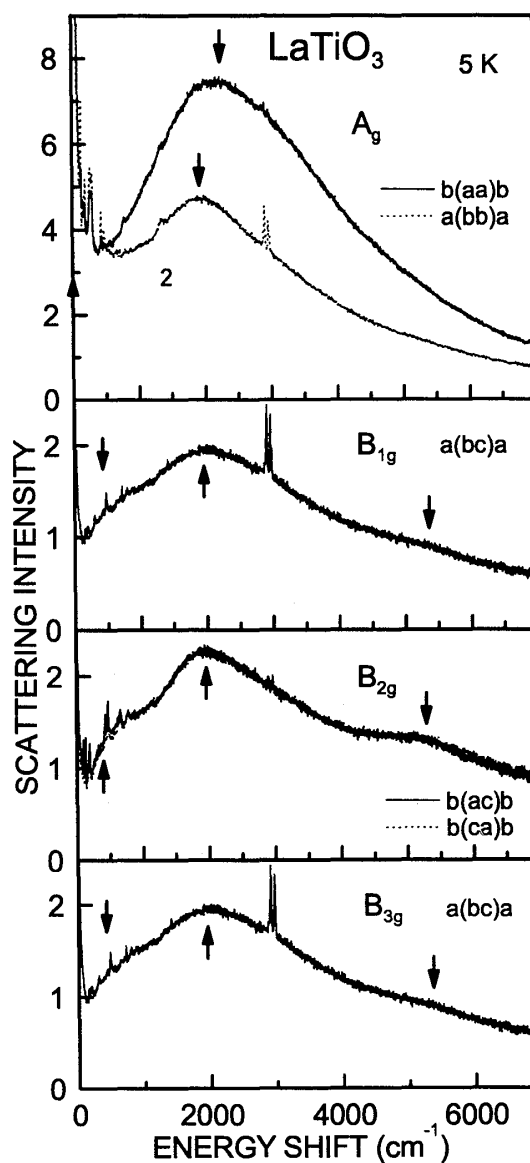
軌道秩序系 YTiO_3 と軌道液体系 LaTiO_3 の軌道波名古屋大学 理学部 菊池 暁,¹ 水貝 俊治²

軌道の自由度が電荷及びスピンの自由度と共に物性に重要な働きをしていることが最近の研究で明らかになってきた。軌道が配列することによる強磁性の出現が古くから理論的に研究されてきたが、実際に軌道の秩序が実験的に確かになったのは最近である。また、軌道の励起状態が波として伝播する事も古くから理論的に研究されてきたが、実験方法がなく「隠れた自由度」とされてきた。最近ラマン散乱で LaMnO_3 の軌道波が報告されたが [1]、軌道波かフォノンかで議論になっている [2, 3]。本研究室では Ti^{3+} が 1 つの 3d 電子をもち 3 重縮退の t_{2g} 軌道の 1 つを占める簡単な構造をとることに注目し、 YTiO_3 と LaTiO_3 の 10 から 7000 cm^{-1} の広エネルギー・ラマン散乱により軌道波を研究した。これらの結晶は CdFeO_3 -型の変形ペロブスカイト構造をとり、 Y^{3+} から La^{3+} までイオン半径の増大と共に TiO_6 八面体の回転角は減少し、Ti-O のヤンテラー歪みは減少する。また、磁性は YTiO_3 の ($T_C=30 \text{ K}$) 強磁性から LaTiO_3 の ($T_N=130 \text{ K}$) G -type 反強磁性になる。単位胞に 4 つの Ti^{3+} イオンがあるので、各位置で xy , yz , zx 3 つの自由度を考慮すると t_{2g} の軌道波のモードは $3A_g+3B_{1g}+3B_{2g}+3B_{3g}$ になる。

図 1 は軌道秩序系 YTiO_3 のラマンスペクトルを示したもので、ラマン散乱配置 $a(bc)a$ は入射光、散乱光の波数ベクトルの方向はそれぞれ a , $-a$ 、電場ベクトル方向は、 b , c であることを示す。それぞれの対称性のスペクトルにおいて 3 つの軌道波のモードが観測された。そのエネルギーは A_g モードでは $470, 1880, 2440 \text{ cm}^{-1}$, B_{1g} モードでは $820, 1930, 5200 \text{ cm}^{-1}$, B_{2g} モードでは $680, 1770, 3580 \text{ cm}^{-1}$, B_{3g} モードでは $830, 1980, 5220 \text{ cm}^{-1}$ である。そのエネルギーは非常に大きく、最も高いエネルギーは 5000 cm^{-1} (0.6 eV) に達している。また、エネルギーの幅も非常に広く、 1000 cm^{-1} から 3000 cm^{-1} (0.4 eV) に達している。この幅が広いことは軌道波の緩和時間が短いことを示唆している。また、 A_g モードの一番低エネルギーのピークは 500 cm^{-1} 付近で、 t_{2g} 軌道の結晶場分裂と同程度の大きさになっている。さらに B_{2g} モードの 2000 cm^{-1} 付近と 3500 cm^{-1} 付近のピークは入射光と散乱光の偏光方向を逆にしたとき、異なる散乱強度を持っており、スピン系との相互作用により、時間反転対称性が破れていると考えられる。

図 2 は軌道液体系 LaTiO_3 のラマンスペクトルを示したのもで、 YTiO_3 のスペクトルに非常に似ている。ラマン散乱では短距離相関を測定するので、軌道液体状態になって長距離秩序がなくなっても、短距離秩序が残っていることを示唆している。両者を比較すると LaTiO_3 の方がピークの幅が大きく揺らぎが大きいことが分かる。また、各モードの一番低エネルギーのピークは LaTiO_3 では 0 cm^{-1} に近づき、結晶場分裂のエネルギーがほとんどなくなっていることと関係している。

¹ E-mail: f020216m@mbox.media.nagoya-u.ac.jp² E-mail: sugai@nucc.cc.nagoya-u.ac.jp

図 1: YTiO₃ の 5K でのラマンスペクトル図 2: LaTiO₃ の 5K でのラマンスペクトル

また B_{2g} モードは、YTiO₃ では 3500 cm^{-1} にあったピークが LaTiO₃ では 5300 cm^{-1} 付近にシフトしている。さらに B_{2g} モードの時間反転対称性は LaTiO₃ で完全に回復している。

参考文献

- [1] E. Saitoh, S. Okamoto, K. T. Takahashi, K. Tobe, K. Yamamoto, T. Kimura, S. Ishihara, S. Maekawa, and Y. Tokura, *Nature* **410**, (2001) 180.
- [2] M. Grüninger, R. Rückamp, M. Windt, P. Reutler, C. Zobel, T. Lorenz, A. Freimuth, and A. Revolevski, *Nature* **418**, (2002) 39.
- [3] J. van den Brink, *Phys. Rev. Lett.* **87**, (2001) 217202.