

## ペロフスカイト型チタン酸化物における磁気-軌道状態: 希土類イオンの作る結晶場の効果

東京大学物性研究所 望月 維人<sup>1</sup>, 今田 正俊

典型的なモット・ハバード型絶縁体であるペロフスカイト型 Ti 酸化物  $RTiO_3$  ( $R$  は希土類イオン) では、強い電子間のクーロン相互作用と  $Ti3d$  軌道の自由度、そして、ある種の格子歪みによってスピン、軌道、電荷の自由度が互いにカップルし合い、豊かな磁気-軌道状態を生み出している。近年、この系で  $GdFeO_3$  型格子歪みの大きさの関数としての磁気相図が実験的に調べられ、希土類サイト置換により歪みの大きさを制御すると反強磁性-強磁性転移が起きることが分かった [1]。この磁気相図は様々な不思議な謎を提供するが、なかでも  $GdFeO_3$  型歪みの小さな領域での G 型反強磁性相の出現機構とその性質は、近年の理論・実験両側面からの精力的な研究にも関わらずほとんど解明されていなかった。

まず、 $GdFeO_3$  型歪みの最も小さい  $LaTiO_3$  では今まで有意な Jahn-Teller 歪みが観測されていないために  $t_{2g}$  軌道の三重縮退が生き残り、その結果スピン-軌道相互作用の基底状態を伴う反強磁性相が実現していると思われていた。しかし、最近の中性子散乱により得られたスピン波分散は、この系でスピン-軌道相互作用が効いていないことを示唆している [2]。したがって、G 型反強磁性相の出現はその起源からして謎である。

また、 $R$  サイトを  $La$ ,  $Pr$ ,  $Nd$ ,  $Sm$  と変えていくと、 $GdFeO_3$  型歪みの増大に伴って Néel 温度が急激に減少していき、 $SmTiO_3$  では非常に強く抑制される。そこから、さらに  $GdFeO_3$  型歪みを大きくしていくと、強磁性の Curie 温度が立ち上るため、この反強磁性-強磁性転移は一見連続転移的な振舞いを見せる。このことは、対称性の異なる磁気秩序間に通常期待される一次転移とは矛盾するため不可解であり、このような Néel 温度の振舞いのメカニズムは謎であった。

今回我々は、G 型反強磁性を示す一連の物質の磁気-軌道構造とその性質が、希土類イオンが作る結晶場の効果を考えることによって包括的に理解できることを議論した。我々は、まず G 型反強磁性相が実現している小さな  $GdFeO_3$  型歪みの領域では、 $TiO_6$  八面体の Jahn-Teller 的な歪みが比較的小さいために、酸素イオンよりはむしろ希土類イオンが作る結晶場が  $t_{2g}$  軌道の縮退を解き、系の電子状態を決定することを指摘した。具体的には、 $GdFeO_3$  型歪みにより誘起された希土類イオン格子の歪みが三回対称的な対称性を持った結晶場を構成し (図 1 参照)、その結晶場中での最低準位の占有が G 型反強磁性状態を安定化させる。この描像に基づくと、スピン波分散が示唆する等方的なスピNCカップリングがスピン交換相互作用の定量的な大きさも含めて再現されることが分かった。

さらに、 $TiO_6$  八面体の Jahn-Teller 型歪みが比較的大きい  $SmTiO_3$  では、酸素による結晶場と  $Sm$  イオンによる結晶場が競合し、磁気構造に強い二次元的な異方性が生じることが分かった。磁

<sup>1</sup> E-mail: motiduki@issp.u-tokyo.ac.jp

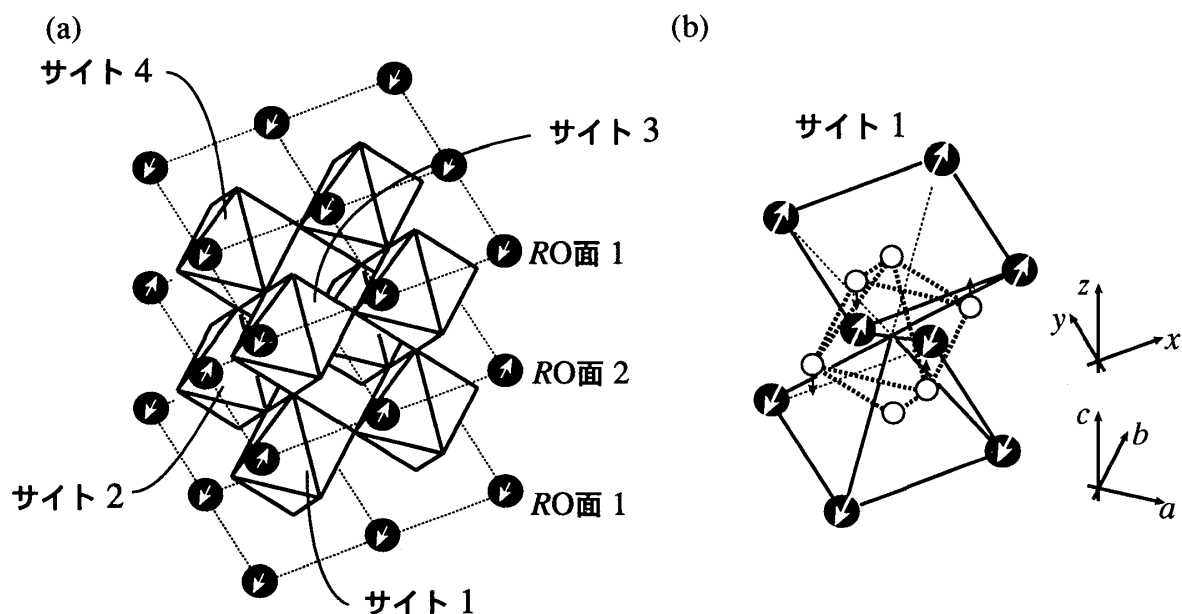


図 1: (a)  $\text{GdFeO}_3$  型歪みによって希土類イオン  $R$  は主に  $b$  軸方向にシフトする。図のように、正方向に一樣にシフトする面 (RO 面 1) と負方向に一樣にシフトする面 (RO 面 2) が  $c$  軸方向に交互に積み重なっている。(b) その結果、例えばサイト 1 を取り出してみると、 $\pm[1,1,-1]$  方向にある二つの  $R$  イオンと Ti イオン間のボンド距離がそれ以外の  $R$  イオンとのボンド距離に比べ短くなり、 $[1,1,-1]$  軸を対称軸とするような三回対称的な結晶場が作られる。

気相図における反強磁性-強磁性転移点近傍での Néel 温度の抑制は、 $\text{SmTiO}_3$  における強い二次元的な磁気構造から理解できる。また、希土類イオンによる結晶場中の最低準位の表現は、 $\text{YTiO}_3$  で観測された軌道構造とよく似た対称性を持っていることが分かり、最近の共鳴 X 線散乱実験の結果をよく説明できることを議論した [3]。

これらの議論を通して、従来はバンド幅制御の観点から注目されていた  $\text{GdFeO}_3$  型歪みが、実は Jahn-Teller 機構と同様の、あるいは Jahn-Teller 機構と競合するような、系の磁気-軌道構造を決定するメカニズムとして働くことを指摘した。これらの議論の詳細については、現在論文にまとめて投稿中である [4]。

## 参考文献

- [1] T. Katsufuji, Y. Taguchi and Y. Tokura: Phys. Rev. B **56** (1997) 10145 など。その他の文献はこの論文に示してある。
- [2] B. Keimer, D. Casa, A. Ivanov, J. W. Lynn, M. v. Zimmermann, J. P. Hill, D. Gibbs, Y. Taguchi and Y. Tokura: Phys. Rev. Lett. **85** (2000) 3946.
- [3] M. Kubota, H. Nakao, Y. Murakami, Y. Taguchi, Y. Tokura, M. v. Zimmermann, J. P. Hill and D. Gibbs: unpublished.
- [4] M. Mochizuki and M. Imada: 投稿中