

ペロブスカイト型バナジウム酸化物の 磁気・軌道秩序に対するランダムネス効果 Randomness effect on spin-orbital order in perovskite-type vanadium oxides

宮坂茂樹¹、福田龍一郎¹、逸見和宏¹、佐々木直哉¹、田島節子¹、川名大地²、
池内和彦²、山崎裕一²、中尾朗子²、中尾裕則²、熊井玲児²、村上洋一²、
岩佐和晃³

1 阪大院理、2 KEK 物構研 PF/CMRC、3 東北大院理

ペロブスカイト型 RVO_3 (R =希土類元素、 Y)では、 V は $3d^2$ の電子状態を取る。2つの $3d$ 電子の内、一つは d_{xy} 軌道を占有し、残り一つの電子が d_{yz} 、あるいは d_{zx} 軌道を占有する自由度を持つ。本系では低温で C 型磁気秩序 (SO)・ G 型軌道秩序 (OO)、 G 型 SO・ C 型 OO の 2 パターンの秩序が出現する。 R^{3+} のイオン半径を変化させると、これらの秩序相への相転移温度は系統的に変化する。また、基底状態の SO・OO はイオン半径の大きな $R=La$ では C 型 SO・ G 型 OO となり、 R サイトのイオン半径を小さくしていくと、 $R=Y$ 付近で G 型 SO・ C 型 OO へと転移する。この磁気・軌道状態の R サイト依存性は、各秩序の安定性が $V-O-V$ の結合角やバンド幅で制御可能であることを示唆している。一方、本系では R サイトに 2 種類の希土類元素を一定の割合で固溶させることにより、バンド幅を変えずにランダムネスだけを変化させることが可能である。本研究では R サイトのイオン半径を固定し、ランダムネスを制御した複数の系を取り上げ、磁化、X 線構造解析、共鳴 X 線散乱、中性子散乱などを用いて、 RVO_3 の磁気・軌道秩序に対するランダムネスの影響を明らかにした。

本研究では R サイトの平均イオン半径が異なる系、 $Y_{1-x}(La_{0.195}Lu_{0.805})_xVO_3$ 、 $Eu_{1-x}(La_{0.254}Y_{0.746})_xVO_3$ 、 $Sm_{1-x}(La_{0.322}Y_{0.678})_xVO_3$ を取り上げた。各々の系で R サイトの平均イオン半径は一定で、その大きさは $R=Y_{1-x}(La_{0.195}Lu_{0.805})_x$ 、 $Eu_{1-x}(La_{0.254}Y_{0.746})_x$ 、 $Sm_{1-x}(La_{0.322}Y_{0.678})_x$ の順に大きくなる。また、全ての系で組成 x とともランダムネスが大きくなる。これらの系では x を増加させると系に導入されたランダムネスが長距離秩序を抑制するために、 G 型 OO への転移温度 T_{OO1} と C 型 SO への転移温度 T_{SO1} は減少する。一方、 $Y_{1-x}(La_{0.195}Lu_{0.805})_xVO_3$ では、母物質の YVO_3 で本来観測されている G 型 SO・ C 型 OO への相転移温度 T_{SO2} が、 x の増加とともに上昇する。 $R=Eu_{1-x}(La_{0.254}Y_{0.746})_x$ 、 $Sm_{1-x}(La_{0.322}Y_{0.678})_x$ の系では、 $x=0$ では存在しなかった G 型 SO・ C 型 OO が、 $x=0.35$ 、 0.50 付近から出現する。全ての系の $x=1.0$ の組成では、低温で出現する SO・OO は G 型 SO・ C 型 OO のみとなる。今回の結果は R^{3+} イオン半径だけでなく、ランダムネスも本系の SO・OO の制御パラメータとなっていることを示している。