

ペロブスカイト型バナジウム酸化物における磁場誘起軌道秩序相転移

Magnetic-field-induced orbital ordering transition in perovskite-type vanadium oxide

宮坂茂樹¹, 安江俊夫², 藤岡淳², 山崎裕一², 十倉好紀², 稲見俊哉³, 石井賢司³

Shigeki MIYASAKA, Toshio YASUE, Jun FUJIOKA, Yuichi YAMASAKI, Yoshinori TOKURA, Toshiya INAMI, Kenji ISHII

¹大阪大学大学院理学研究科 ²東京大学大学院工学系研究科 ³原子力機構

(要約) ペロブスカイト型バナジウム酸化物 $DyVO_3$ における磁場誘起軌道秩序相転移は磁場中での磁化、誘電率などのマクロな物性測定により研究されてきた。今回、磁場中のX線回折の手法により、この相転移に伴う斜方晶-単斜晶構造相転移を観測することに成功した。

キーワード：軌道秩序、磁場誘起構造相転移、ペロブスカイト型V酸化物、磁場中X線回折

1. 目的 ペロブスカイト型 RVO_3 (R =希土類元素、 Y)には二つの軌道秩序が存在している。各々の軌道秩序は異なった結晶構造、反強磁性磁気秩序を伴っている。希土類元素のイオン半径の変化により、二つの軌道秩序状態の安定性は制御できる¹。今回対象とした $DyVO_3$ は、相図上で二つの軌道秩序状態の相境界近傍に位置している。そのため、本物質では温度変化により、これらの二つの秩序状態間でのリエントラント相転移が生じている。また、 $DyVO_3$ では磁場を ab 軸方向に印加することで、メタ磁性転移や磁気誘電性の異常などが観測され、これは磁場誘起による軌道秩序相転移によるものではないかと考えられていた。今回、磁場中でのX線回折実験を行うことで、この軌道秩序相転移に伴う構造相転移の検出を試みた。

2. 方法 RVO_3 で出現する二つの軌道秩序は各々斜方晶 $Pbnm$ 、単斜晶 $P2_1/a$ の構造を伴っている。これらをX線回折実験で区別するためには、 $(h0l)$ ($h+l=2n+1$)の反射に注目すればよい²。この反射は $Pbnm$ では禁制だが、 $P2_1/b11$ の対称性のもとでは許容となっている。今回は(401)反射に関して観測を行った。試料は浮遊帯域溶融法による大型単結晶を用いた。測定にはこの結晶の bc 面を使用し、スプリット型マグネットを用いて a 軸方向に磁場をかけた。

3. 研究成果 ゼロ磁場下で(401)反射の温度依存性を測定したところ、温度の降下とともに、結晶構造(軌道秩序)が斜方晶(軌道非秩序)-単斜晶(G型軌道秩序)-斜方晶(C型軌道秩序)-単斜晶(G型軌道秩序)のように変化することが判明した。一方で、5Tの磁場を印加した場合、中間温度領域で観測された斜方晶(C型軌道秩序)相は消失し、低温、高磁場下では単斜晶構造を伴ったG型軌道秩序状態が安定化していることが明らかになった。一方、C型軌道秩序相の温度領域までゼロ磁場下で試料を冷却し、その後に磁場を試料に印加したとき、磁場により低磁場の斜方晶から単斜晶への相転移が生じていることが判明した。これらの相転移は、磁化や誘電率の異常が発生する温度・磁場において生じており、過去の磁化、誘電率の異常も、磁場誘起の構造・軌道相転移を観測していることが明らかになった。

4. 結論・考察 現段階では下のような機構により、磁場誘起軌道(構造)相転移が生じていると考えている。高磁場での磁化の値はVのスピンの期待されるものよりもはるかに大きく、Dyの磁気モーメントがそのほとんどを担っている。メタ磁性転移にはDyの磁気モーメントが関与しており、磁場を増大させた際に観測される磁化のとびは、Dyのモーメントが磁場の印加方向近いイジング容易化軸へ反転することにより生じている。それにより変化した内部磁場によりVの磁気秩序状態が別の秩序状態へとスイッチし、同時にこの磁気秩序と強く結合したVの軌道秩序状態の相転移、更に構造相転移が生じるのだと予想している。

5. 引用(参照)文献等

¹ S. Miyasaka *et al.*, *Phy. Rev. B* 68, 100406 (2003).

² G. R. Blake *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 87, 245501 (2001).