

平成22年 3月31日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2007 ~ 2009

課題番号：19740203

研究課題名 (和文) ルテニウム酸化物における「異常な」異常ホール効果と磁気構造

研究課題名 (英文) "Anomalous" extraordinary Hall effect in ruthenium oxides

研究代表者

小林 義彦 (KOBAYASHI YOSHIHIKO)

東京医科大学・医学部・講師

研究者番号：60293122

研究成果の概要 (和文)：

Ru 酸化物 $Ba_{1-x}Sr_xRuO_3$ の異常ホール効果の研究を行った。 $x = 1$ においては、常磁性領域 ($T > 160K$) および $60K$ 以上の強磁性領域では、異常ホール係数はスキュー散乱、サイドジャンプ散乱の2つの散乱メカニズムで説明できた。 $60K$ 以下では、磁場依存性、温度依存性両方に異常が見られた。また、 $x = 0.8$ ではこれらの異常が消失していることが観測された。構造解析の結果、 $x = 1$ では $60K$ 以下で結晶格子の対称性の低下が観測されたが、 $x = 0.8$ では観測されなかった。以上の結果より、 $x = 1$ における異常ホール効果の「異常」は、構造変化に伴うフェルミ面の変調が、主にサイドジャンプ散乱の特性を変化させていることによるものと考えられる。

研究成果の概要 (英文)：

We have investigated the extraordinary Hall effect of $Ba_{1-x}Sr_xRuO_3$ with $x = 1$ and 0.8 . For $x = 1$, extraordinary Hall coefficient R_s can be interpreted by the skew scattering mechanism in the paramagnetic region above about $160 K$ and by the combination of the skew and the side-jump scattering mechanisms in the ferromagnetic region above about $60 K$, which means that the mechanism of the extraordinary Hall effect in the system is basically the same as that of the ordinary ferromagnetic metals. Below $60 K$, the extraordinary Hall resistivity ρ_H shows an anomalous field dependence at intermediate field region. The deviation from the linear relation in R_s/ρ versus ρ was also observed below $60 K$, which suggests that the coefficients a and b of the skew and the side-jump scattering depends on both temperature and field below $60 K$. No anomalies both in the temperature and the field dependence below $60 K$ were observed in the sample with $x = 0.8$. According to the structural analysis of the samples, we infer that the modulation of the Fermi surface due to the structural change plays an important role on the anomaly of the extraordinary Hall effect for $x = 1$.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,800,000	0	1,800,000
2008年度	800,000	240,000	1,040,000
2009年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	450,000	3,750,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：強相関電子系、ペロブスカイト型ルセニウム酸化物、磁性・電子輸送現象、異常ホール効果、結晶構造変化

1. 研究開始当初の背景

磁性と電子輸送現象は物性研究においてどちらもきわめて重要な主題であるにもかかわらず、磁性においては主に電子のスピンが、電子輸送現象においては電荷が役割を担うと考えられており、両者の間の関連はほとんど注目されていなかった。しかし、磁性体においてはその磁気的特性により特異な電子輸送現象がみられる。近年では、いわゆる「スピン-エレクトロニクス」の進歩に伴い、電子のスピンが重要な役割を果たす電子輸送現象が注目されている。磁性体に特有なホール効果である、異常ホール効果はその一つである。

異常ホール効果はスピン-軌道相互作用による伝導電子の左右非対称散乱（スキュー散乱およびサイドジャンプ散乱）によって理解されてきた。しかし近年、 SrRuO_3 薄膜やパイロクロア型酸化物などいくつかの金属的電気伝導性酸化物において、異常ホール効果に従来の理論では説明できない「異常」が存在するという報告がある。異常ホール効果の「異常」を説明するため、スピン・カイラリティまたは量子スピン系におけるベリー位相に起因する、新しい異常ホール効果のメカニズムが提案されている。しかしながら、新しいメカニズムによる異常ホール効果を主張するこれまでの報告は、(i) 伝導電子のサイクロトロン運動に起因する正常ホール成分と磁気的散乱に由来する異常ホール成分の分離を行っていない、(ii) 異常ホール効果が電気抵抗の2乗でスケールできないことのみをもって従来の異常ホール効果の理論では説明できないと主張している、(iii) 構造転移、磁気転移に伴うフェルミ面の変化によって正常ホール係数、異常ホール係数はどちら

も変化しうるが、その可能性を無視している、(iv) 散乱特性が異なる複数の散乱体が物質中に存在することに起因して異常ホール係数が特異な温度変化をする可能性を考慮していない、などの点において、そもそも異常ホール効果の「異常」の議論を正しく行っていないかった。

2. 研究の目的

第一に、 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{RuO}_3$ の異常ホール効果の「異常」を明らかにするため、電子輸送現象および磁化測定とX線回折ならびにX線磁気散乱実験を同一試料、同一条件下で系統的に行うことにより、電子輸送特性および結晶構造、磁気構造の2つの側面から $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{RuO}_3$ の異常ホール効果の「異常」を明らかにすることを目的とした。さらに、共通する特徴をもつ酸化物（ペロブスカイト類似の層状構造をもつRu酸化物 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{RuO}_3$ およびダブルペロブスカイト構造を持つMn/Ni酸化物 $\text{La}_{2-x}\text{Bi}_x\text{NiMnO}_6$ など）について、その結晶構造・磁性・電子輸送特性を詳細に調べ、 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{RuO}_3$ と比較することで、 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{RuO}_3$ の異常ホール効果の「異常」の原因の起源を明らかにすることを合わせて第二の目的とした。

3. 研究の方法

$\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{RuO}_3$ の異常ホール効果については、(1) 単結晶および薄膜試料作製、(2) 電子輸送現象および磁化測定、(3) X線回折ならびにX線磁気散乱実験を行った。以上の測定から異常ホール効果の「異常」な振る舞いに関連する電子輸送特性を総合的に調べ、その結果を注意深く解析することにより、従来の異常ホール効果の理論では説明できない異常ホール成分を分離した。また、そのうちの温

度依存性に関しては、結晶構造の温度変化との比較をおこなった。

また、 $Ba_xSr_{1-x}RuO_3$ のうち、ペロブスカイト類似の層状構造をとる組成では、結晶構造解析、電子輸送現象および磁化測定により、結晶構造の違いによるフェルミ面の違いが物性に及ぼす変化の抽出を行った。

$Ba_xSr_{1-x}RuO_3$ と類似のペロブスカイト構造をもち、Bサイトに異なる遷移金属イオンを秩序配列させた強磁性酸化物

$La_{2-x}Bi_xNiMnO_6$ では、結晶構造解析、磁化測定、誘電率測定、電気磁気効果測定、核磁気共鳴測定を行い、この物質の電子状態と強磁性・強誘電特性との関連について調べた。

4. 研究成果

(1) 異常ホール効果について、 $SrRuO_3$ では薄膜試料および単結晶試料両方において、(i) 60K以下の低温では中間磁場領域で磁化ではスケールできず、約 7Tの高磁場では消失する異常ホール効果の余剰項がある。(ii) 60K以上での異常ホール効果はこれまでの左右非対称散乱メカニズム(スキュー散乱とサイドジャンプ散乱の重ね合わせ)で説明できる。(iii) 強磁性相と常磁性相では正常ホール係数・異常ホール係数とも大きく異なっており、未知の格子変調に伴うフェルミ面の再構築によりフェルミ面が異なっている可能性が高い。また $Ba_{0.2}Sr_{0.8}RuO_3$ 薄膜においては異常ホール効果の特性(i)と(iii)の特性がほとんどなくなっていること、膜面方向垂直磁気異方性が著しく増大していることを観測した。また、放射光 X 線回折実験では、 $SrRuO_3$ の磁気転移温度以下での(0 0 0.5)の超格子反射の成長と 60K 以下での超格子反射の分裂すること、 $Ba_{0.2}Sr_{0.8}RuO_3$ では 60K 以下での超格子反射の分裂が存在しないことを観測した。以上の結果は $SrRuO_3$ では 2 段階、 $Ba_{0.2}Sr_{0.8}RuO_3$ では 1 段階の格子対称性低下を示唆する。これは、格子変調に伴うフェルミ面の再構築が異常ホール効果の原因とする我々の考えを指示する結果である。以上の結果より、 $x = 1$ における異常ホール効果の「異常」は、構造変化に伴うフェルミ面の変調が、主にサイドジャンプ散乱の特性を変化させていることによるものと考えられる。

(論文投稿準備中)

(2) Sr 濃度変化に対し構造が変化する系である $Ba_xSr_{1-x}RuO_3$ 多結晶試料において、これまで明らかにされていなかった 6 層構造 ($0.5 \leq x \leq 0.7$) の構造解析を行った。その結果室温では単斜晶 C2/c 構造であるが、温度上昇とともに単斜晶の歪みが減少し、高温で六方晶 P6₃/mmc 構造であることを明らかにした。さらに、単斜晶歪みの温度依存性から、構造転移は 2 次の相転移であること、転移温度は、 $x = 0.5$ で 576K、 $x = 0.6$ で 711K、 $x = 0.7$ で 892K と見積もられた。また、9 層、4

層、6 層、ペロブスカイト相の相境界と固溶限界を明らかにし、この系の Sr 濃度に対する相図を確立した。

また、 $Ba_xSr_{1-x}RuO_3$ 単結晶試料のうち、ペロブスカイト類似の層状構造をとる組成では、磁性・電子輸送特性に以下の特徴を見いだした。9 層菱面晶構造 (9R; $x < 0.1$) では、(i) 帯磁率の温度依存性は低温でキュリーワイス的、高温でパウリ常磁性的だが、パウリ常磁性的成分は温度上昇とともに増大する、(ii) 電気抵抗は高温で金属的だが、100K 以下で温度低下とともに増大する、(iii) ホール効果は全温度領域で正で、温度上昇とともに単調に減少する。一方、4 層六方晶構造 (4H; $0.1 < x < \sim 0.4$) では、(i) 帯磁率は 9R と同様キュリーワイス的成分+パウリ常磁性的成分で表されるが、9R のそれと異なり、パウリ常磁性的成分はほとんど温度変化しない、(ii) 電気抵抗は全温度領域で金属的、(iii) ホール効果は低温で負、高温で正と、符号が反転する。以上の特性を、層状構造の違いによるフェルミ面の形状の違いで説明した。また、全組成で、帯磁率のキュリーワイス的成分が Ru^{4+} の局在モーメントの値の 1/10 程度の大きさしかないことから、Ru の 3d 電子が局在と遍歴の中間的な性質を持つことを見いだした。

(3) $Ba_xSr_{1-x}RuO_3$ と類似のペロブスカイト構造をもち、Bサイトに異なる遷移金属イオンを秩序配列させた強磁性酸化物 $La_{2-x}Bi_xNiMnO_6$ において、結晶構造解析および電気・磁気特性の研究をおこない、Ni-O-Mn 間の超交換相互作用と Bi-O の共有結合の競合により磁性と誘電特性が競合すること、見かけの電気磁気特性が向上することを、磁化測定、磁場中誘電率測定および核磁気共鳴測定などから明らかにした。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

- (1) Extraordinary Hall Effect in $Ba_{1-x}Sr_xRuO_3$: Y. Kobayashi, M. Iwata, T. Kaneko, K. Sato and K. Asai : Journal of Physics: Conference Series, in press. (査読有)
- (2) Magnetic and Transport Properties in $Ba_{1-x}Sr_xRuO_3$ Single Crystals : Y. Kobayashi, T. Kaneko and K. Asai : Journal of Physics: Conference Series, in press. (査読有)
- (3) Field Induced Spin-State Transition in $LaCoO_3$: K. Sato, A. Matsuo, K. Kindo, Y.

- Kobayashi and K. Asai : J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 093702-1~5. (査読有)
- (4) Crystal Structure of six-layer $Ba_{1-x}Sr_xRuO_3$: Y. Kobayashi, T. Ohishi, T. Kaneko, M. Iwata and K. Asai : J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 094601-1~5.
- (5) Hyperfine Magnetic Field at ^{55}Mn in Ferromagnetic Perovskites $RE Mn_{0.5}(Ni_{1-x}Mg_x)_{0.5}O_3$ with RE = La, Pr, Nd and Eu - RE Dependence of Supertransferred Hyperfine Interaction -” : T. Kawakami, S. Enoshita, M. Kamogawa, Y. Kobayashi and K. Asai : J. Phys. Soc. Jpn. 77 (2008) 094714-1~7. (査読有)
- (6) Crystal Structure, Magnetism and Dielectric properties of $La_{1-x}Bi_xNi_{0.5}Mn_{0.5}O_3$: Y. Kobayashi, M. Shiozawa, K. Sato, K. Abe and K. Asai : J. Phys. Soc. Jpn. 77 (2008) 084701-1~8. (査読有)
- (7) High field magnetostriction of spin-state transition compound $LaCoO_3$: K. Sato, M. I. Bartashevich, T. Goto, Y. Kobayashi, M. Suzuki, K. Asai, A. Matsuo and K. Kindo : J. Phys. Soc. Jpn. 77 (2008) 24601-1~6. (査読有)
- (8) Structural characterization by electronic transport properties on Fe_3Si films : Y. Kobayashi, T. Kaneko, M. Kamogawa, K. Asai, K. Akiyama and H. Funakubo : J. Phys. D: Appl. Phys. 40 (2007) 6873-6878. (査読有)
- (9) Electronic structure of $La_{1-x}Pr_xCoO_3$ and $NdCoO_3$ studied by photoemission spectroscopy : T. Saitoh, D. Ishii, A. Hachimura, M. Hirose, Thant Sin Naing, Y. Kobayashi, K. Asai, M. Nakatake, M. Higashiguchi, K. Shimada, H. Namatame, and M. Taniguchi : J. Magn. & Magn. Mater. 310 (2007) 981-983. (査読有)
- (10) Structural analysis of iron mixed-valence complex $(n-C_3H_7)_4N[Fe^{II}Fe^{III}(dto)_3]$ ($dto=C_2O_2S_2$) under high pressure” : M. Itoi, N. Kida, Chin-Lin, M. Koeda, N. Kojima, M. Hedo, Y. Uwatoko Y. Kobayashi, K. Asai, Y. Ohishi and M. Takata : J. Phys. Soc. Jpn. 76 (2007) suppl. A, 190-191 (査読有)
- [学会発表] (計 13 件)
1. 六層構造 $Ba_{1-x}Sr_xRuO_3$ の構造相転移 : 小林義彦, 新井伸英, 金子徹也, 浅井吉蔵 : 2009年9月27日 2009年秋季大会 (熊本大) : 日本物理学会講演概要集第 64 巻第 2 号第 3 分冊 p.399.
 2. $La_{1-x}Sr_xCoO_3$ における強磁場誘起スピン転移 : 佐藤桂輔, 松尾晶, 金道浩一, 小林義彦, 浅井吉蔵 : 2009年9月27日 2009年秋季大会 (熊本大) : 日本物理学会講演概要集第 64 巻第 2 号第 3 分冊 p.399.
 3. イットリウム鉄ガーネットの誘電緩和と磁気緩和の試料依存性 : 新井伸英, 榎下峻平, 小林義彦, 阿部浩二, 中村仁, 浅井吉蔵 : 2009年9月27日 2009年秋季大会 (熊本大) : 日本物理学会講演概要集第 64 巻第 2 号第 3 分冊 p.399.
 4. 二重ペロブスカイト型 Co 酸化物の光電子分光 : 西村淳一, 齋藤智彦, 小林義彦, 浅井吉蔵, 浜田典昭, 仲武昌史, 姜健, 島田賢也, 生天目博文, 谷口雅樹, 上田茂典, 山下良之, 吉川英樹, 小林啓介 : 2009年9月27日 2009年秋季大会 (熊本大) : 日本物理学会講演概要集第 64 巻第 2 号第 3 分冊 p.399.
 5. 日本磁気学会第 32 回化合物新磁性材料専門研究会「酸化物遍歴電子磁性体の最近の話題」(2009年3月6日, 早稲田大学大久保キャンパス) : “ $Ba_{1-x}Sr_xRuO_3$ の

- 「異常な」異常ホール効果”：小林義彦 (招待講演)
6. $\text{La}_{1-x}\text{Bi}_x\text{Mn}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}\text{O}_3$ の ^{55}Mn NMR (II) : 浅井吉蔵, 川上貴史, 榎下俊平, 鴨川征史, 塩沢正規, 小林義彦 : : 2009 年 3 月 28 日第 64 回年次大会 (立教大) : 日本物理学会講演概要集第 64 巻第 1 号第 3 分冊 p.477.
 7. LaCoO_3 における強磁場誘起スピン転移 : 佐藤桂輔, 松尾晶, 金道浩一, 小林義彦, 浅井吉蔵 : 2009 年 3 月 27 日第 64 回年次大会 (立教大) : 日本物理学会講演概要集第 64 巻第 1 号第 3 分冊 p.465.
 8. " LaCoO_3 の強磁場物性" : 佐藤桂輔, 松尾晶, 金道浩一, 小林義彦, 浅井吉蔵 : 2008 年 9 月 21 日 2008 年秋季大会 (岩手大) : 日本物理学会講演概要集第 63 巻第 2 号第 3 分冊 p.399.
 9. $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_3$ の結晶構造と磁性・電子輸送現象 : 金子徹也, 小林義彦, 浅井吉蔵 : 2007 年 9 月 21 日第 62 回年次大会 (北海道大) : 日本物理学会講演概要集第 62 巻第 2 号第 3 分冊 p.533.
 10. $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{RuO}_3$ の異常ホール効果と磁気構造 : 小林義彦, 金子徹也, 鴨川征史, 大隅寛幸, 浅井吉蔵 : 2007 年 9 月 21 日第 62 回年次大会 (北海道大) : 日本物理学会講演概要集第 62 巻第 2 号第 3 分冊 p.534.
 11. 日本応用磁気学会第 23 回化合物新磁性材料専門研究会「磁性を引き金にした遷移金属化合物の新機能—マルチフェロイックを中心に—」(2007 年 2 月 9 日, 東京工業大学): “ $\text{La}_{1-x}\text{Bi}_x\text{Ni}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_3$ の磁性と誘電特性” : 小林義彦 (招待講演)
 12. SPring8 情報・磁気デバイス研究分野合同研究会 (2006 年 10 月 30 日~31 日,

SPring8): “ SrRuO_3 の「異常な」異常ホール効果と磁気構造” : 小林義彦 (招待講演)

13. " SrRuO_3 薄膜の異常ホール効果” : 小林義彦, 岩田正俊, 浅井吉蔵, 佐藤桂輔, 近藤正雄 : 2006 年 3 月 27 日第 61 回年次大会 (愛媛大・松山大) : 日本物理学会講演概要集第 61 巻第 1 号第 3 分冊 p.529.

[図書] (計 件)
[産業財産権]
○出願状況 (計 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
国内外の別 :

○取得状況 (計◇件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
取得年月日 :
国内外の別 :

6. 研究組織
(1) 研究代表者
小林 義彦 (KOBAYASHI YOSHIHIKO)
東京医科大学・医学部・講師
研究者番号 : 60293122

研究者番号 :

(2) 研究分担者 ()

研究者番号 :

(3) 連携研究者 ()

研究者番号 :

