

論文の内容の要旨

論文題目 遍歴強磁性体の異常ホール効果と異常ネルンスト効果

氏名 宮里 卓郎

ホール効果は物質に電流を流し、それに垂直に磁場をかけると電流・磁場両方向に対し垂直に電圧が現れるというもので、半導体などではキャリア数を出すために用いられる。ここで物質が強磁性体である場合、 T_c (常磁性-強磁性転位温度) 以下で、自発磁化に起因したホール効果が現れ、異常ホール効果として知られている。この現象はしばしば次の式において実験データが分析される。 $\rho_H = R_0 B + 4\pi R_S M$ ここで B, M はそれぞれ付加した磁場と自発磁化である。この式の最初の項は正常ホール効果でローレンツ力によるもので、 R_0 は正常ホール定数である。第二項は異常ホール効果を示し、 R_S は異常ホール定数となる。この式に従うと異常ホール効果は磁化に比例しなければならない。しかしほとんどの物質における異常ホール効果は磁化に比例しておらず、定性的にも定量的にもこの式は成り立たない。この異常ホール効果の起源は大変興味をもたれており、半世紀以上も議論され続けている。その理論のほとんどは skew scattering ($\rho_{yx} \propto \rho_{xx}$) や side-jump ($\rho_{yx} \propto \rho_{xx}^2$) などを含んだ extrinsic な機構を起源としている。さらに、異常ホール抵抗率 ρ_{yx} の大きさは不純物の散乱強度や密度などによると考えられている。これらの extrinsic な寄与とは対照的に、近年、いくつかの仕事で異常ホール効果の起源は Block 電子における Berry 位相という新しい見識により intrinsic の寄与によると提案された。この理論は、異常ホール効果の起源は、量子ホール効果と同様に占有状態における Berry phase curvature の和によって与えられるというものである。さらにいくつかのグループは Berry phase scinerio に従った第一原理計算により強磁性半導体、遷移金属、酸化物の異常ホール伝導度 σ_{xy} を評価して、実験値をよく再現している [1]。

このように異常ホール効果の起源については intrinsic な寄与、または extrinsic な寄与など様々な理論的解釈が提案されているが、未だにその議論は収束していない。そこで本研究では半世紀以上にもわたり議論され続けてきた異常ホール効果の起源について、intrinsic な寄与によるものか extrinsic な寄与によるものなのかを明らかにすること、そして、異常ホール効果と同様の交差相関の現象であり、異常ホール効果と大変関係が深いと考えられる異常ネルンスト効果について、その振舞いを明らかにし、さらに異常ネルンスト効果を解析することを通じて、異常ホール効果の起源について更なる情報を得ることを目的とした。

そこで本研究では遍歴強磁性体である Fe, Co, Ni, Gd などの純金属や SrRuO_3 , $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ などの酸化物、カルコゲナイト化合物 $\text{Cu}_{1-x}\text{Zn}_x\text{CrSe}_4$ 、の異常ホール効果、異常 Nernst 効果を測定し、総合的に理論との比較を行った。

それぞれの物質の異常ホール伝導度 σ_{xy} を温度に対してプロットすると、低温で急激に発散

したり、符号が逆転したりと一見全く異なる振舞いを示す。しかし、基底状態(磁化が十分飽和した領域)のデータ、つまり、純金属では室温以下すべての温度、酸化物、カルコゲナイト化合物では最低温の異常ホール伝導率 σ_{xy} のみを抜き出して伝導率 σ_{xx} に対してプロットすると大変興味深い振舞いが明らかになる。図1に異常ホール伝導率の絶対値 $|\sigma_{xy}|$ の伝導率 σ_{xx} 依存性を示す。図1を見ると物質に関係なく σ_{xy} はユニバーサルな曲線を描いていることが分かる。また三つの領域の振る舞いに分類できることが分かる。それは $\sigma_{xx} < 10^4 \text{S/cm}$ で $|\sigma_{xy}| \propto \sigma_{xx}^{1.6}$ となり、 $10^4 \text{S/cm} < \sigma_{xx} < 10^6$ で $|\sigma_{xy}| = \text{const.}$ となり、 $10^6 \text{S/cm} < \sigma_{xx}$ で $|\sigma_{xy}| \propto \sigma_{xx}$ という三領域の振舞いである。

このような振舞いは最近、共同研究を行った小野田らにより提案された extrinsic な寄与そして intrinsic な寄与、両方を取り入れた厳密な計算で説明できることが分かった。

まず $\sigma_{xx} = 10^4 \sim 10^6 \text{S/cm}$ の中間領域、物質で言うと SrRuO₃ や純金属では $|\sigma_{xy}| \sim 1000 \text{S/cm}$ で σ_{xx} に対してほとんど一定の値をとる。これは $\rho_{xy} \propto \rho_{xx}^2$ を意味する。この $|\sigma_{xy}|$ の大きさは、フェルミ面近傍における非断熱過程による“共鳴”異常ホール効果の理論計算による order、 $e^2/h a \sim 10^3 \text{S/cm}$ (a: 格子定数) と矛盾しない。この共鳴異常ホール効果は intrinsic な寄与によるものであるが、これに対して skew や side jump などの extrinsic な寄与はこの領域では $e^2/h a$ に対して十分小さいので無視できる。このためこのプラトリーな領域では intrinsic な寄与が支配的であるとみなせる。

次に $\sigma_{xx} > 10^6 \text{S/cm}$ の十分 clean な領域、物質で言うと Fe や Co の低温部分では $|\sigma_{xy}|$ は物質により異なっているよう見える。古典的ボルツマン輸送方程式に従うと、不純物散乱は skewness や side jump を通して異常ホール伝導率に寄与する。そして skew 散乱は clean limit において $|\sigma_{xy}| \propto \sigma_{xx}$ で発散させる。図1を見ると実験結果と $|\sigma_{xy}| \propto \sigma_{xx}$ の線はわずかにずれているが、中間領域の intrinsic な領域とは振舞いは明らかに変化し、+ または - へ発散している。このため clean な極限では extrinsic、特に skew 散乱の寄与が支配的になるとみなせる。

最後に $\sigma_{xx} < 10^4 \text{S/cm}$ の dirty な領域、物質で言うと Cu_{1-x}Zn_xCr₂Se₄ や La_{1-x}Sr_xCoO₃ では $\sigma_{xx} = 10^4 \sim 10^6 \text{S/cm}$ の中間領域で見えていた intrinsic な寄与が不純物による damping によって抑制されるため、伝導率 σ_{xx} の減少とともに異常ホール伝導率 $|\sigma_{xy}|$ も減少しており、実験的には $|\sigma_{xy}| \propto \sigma_{xx}^{1.6}$ となっている。この指数は量子ホール効果の絶縁体領域で期待されるものである。

このように上で示した三つのスケール領域の振舞いは intrinsic の寄与、extrinsic の寄与両方を取り得た統一された理論で大変よく説明できた。[3]

以上の結果から異常ホール効果の起源は intrinsic な寄与と extrinsic な寄与両方で説明できることがわかり、異常ホール効果の起源における長年の議論に決着をつけることに成功した。

次に異常ネルンスト効果について述べる。Nernst の測定系は試行錯誤を繰り返しながら自作した。横ペルチェ係数 α_{xy} は Mott の式より次の式のように表される。[2]

$$\alpha_{xy} = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3e} \frac{d}{d\varepsilon} [\sigma_{xy}(\varepsilon)]_{\mu} \quad (1)$$

ここで k_B はボルツマン定数で、 e は電荷、 μ はケミカルポテンシャルである。Tc より高温の

部分から低温まで測定することができる酸化物において α_{xy} の温度依存性を見てみると、その振舞いは式 (1) で説明することができる。図 2 に $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ ($x=0.30, 0.25, 0.17$)、 SrRuO_3 における α_{xy} と磁化の温度依存性を示す。どの物質においても同様な振舞いをしていることが見て取れる。つまり α_{xy} は Tc 近傍から磁化に比例するような形で立ち上がり、その後ピークを持った後、低温で温度に比例して絶対零度に向けて消えていく。この振舞いを式(2)を使って理解すると、Tc 近傍ではバンドの分裂によりフェルミ面近傍のバンド構造が変化することにより $\frac{d}{d\varepsilon}[\sigma_{xy}(\varepsilon)]_{\mu}$ の寄与が大きく効いてくる。そして低温では磁化の飽和に伴ない

$\frac{d}{d\varepsilon}[\sigma_{xy}(\varepsilon)]_{\mu}$ の寄与が小さくなり式(2)中の T において温度に比例して消えていくと考えられる。このことより強磁性の異常 Nernst 効果の振舞いは定性的に式(2)によって説明されることが分かった。

さらに $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ ($x=0.3 \sim 0.18$) の α_{xy} における定量的分析を行った。(1) 式は

$$\frac{d}{d\varepsilon}[\sigma_{xy}(\varepsilon)]_{\mu} = \frac{dn}{d\varepsilon} \frac{d}{dn}[\sigma_{xy}(\varepsilon)]_{\mu} \text{ の変形を使うことによって}$$

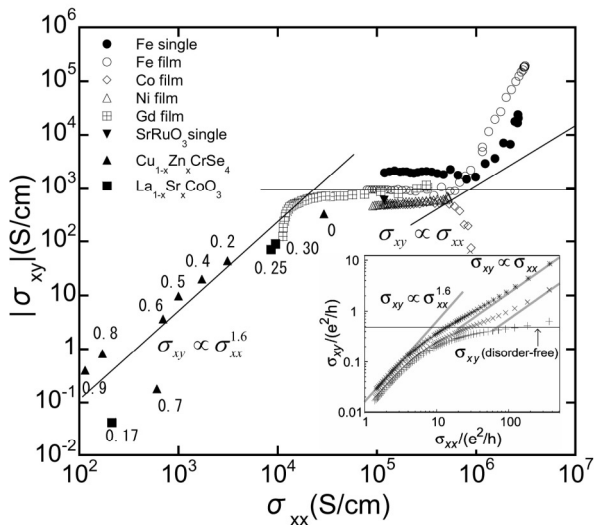
$$\frac{\alpha_{xy}}{T} = \frac{\gamma}{e} \frac{d}{dn}[\sigma_{xy}(\varepsilon)]_{\mu} \quad (2)$$

と書き換えることができる。ここで γ は電子比熱係数である。式変形をすることができたことより、すべての値を実験により求めることのできる量にすることができたので、比熱、キャリア数を実験で求めて右辺と左辺を独立に算出し、比較した。このとき微分 $d\sigma_{xy}/dn$ は差分 $\Delta\sigma_{xy}/\Delta n$ に置き換えて計算した。表 1 に各組成における実験データを示す。図 3 に両辺の関係を示す。縦軸が左辺、横軸が右辺である。図 3 を見ると両辺が比例関係にあることは明らかで、その傾きは 0.85 となっている。1 からわずかにずれている理由についてはまだ分かっていないが、異常横ペルチエ係数 α_{xy} は少なくとも $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ の領域 (dirty な領域) では Mott の式に従うことが明らかになった。このことは異常ホール伝導率 σ_{xy} を通してネルンスト効果にも Berry phase scinerio が寄与していることを示唆している。

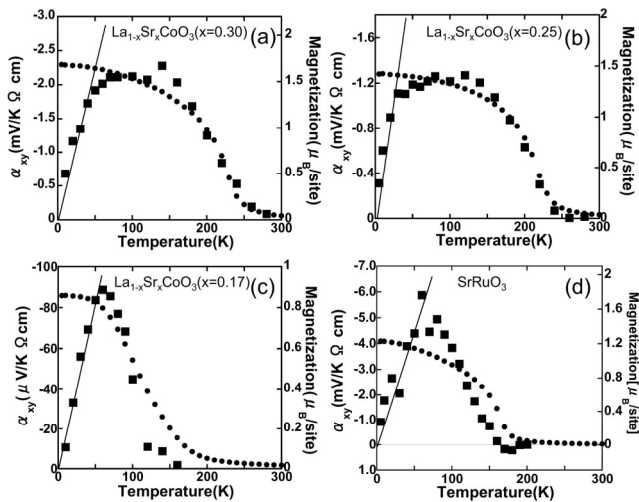
[1] Z. Fang, N. Nagaosa, K. S. Takahashi, A. Asamitsu, R. Mathieu, T. Ogasawara, H. Yamada, M. Kawasaki, Y. Tokura, and K. Terakura, *Science* **302**, 92(2003); R. Mathieu, A. Asamitsu, H. Yamada, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, Z. Fang, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **93**,016602-1(2004)

[2] *J. Phys. C: Solid State Phys.*, **10**, 2153(1977)

[3] S. Onoda, N. Sugimoto, and N. Nagaosa, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 126602(2006)

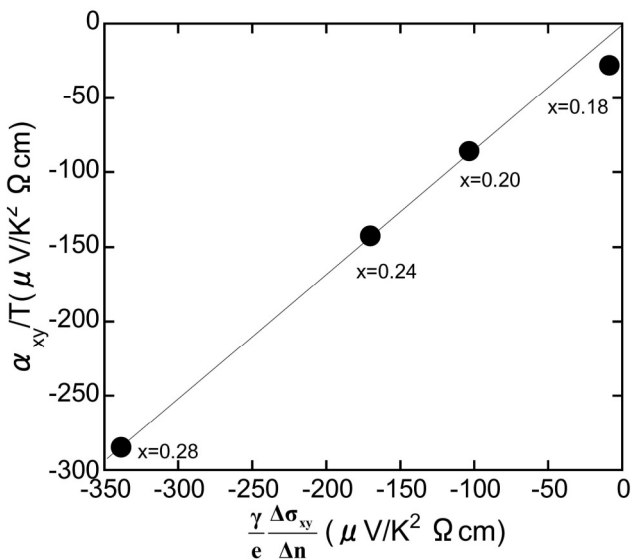


↑ 図1: 純金属(Fe,Co,Ni,Gd)、酸化物(SrRuO₃, La_{1-x}Sr_xCoO₃)、カルコゲナイト化合物(Cu_{1-x}Zn_xCr₂Se₄)における異常ホール伝導率の絶対値|σ_{xy}|の抵抗率σ_{xx}依存性。挿入図は小野田らの理論から得られたグラフ。



↑ 図2: 異常横ペルチエ係数 α_{xy} (■)と磁化M(●)の温度依存性。それぞれ(a)La_{1-x}Sr_xCoO₃(x=0.30) (b) La_{1-x}Sr_xCoO₃(x=0.25) (c) La_{1-x}Sr_xCoO₃(x=0.17) (d)SrRuO₃。低温での直線は α_{xy}の変化がTに直線的であることを示している。

X	α _{xy} /T (μV/K ² ohm cm)	Left side	Right side	σ _{xy} (S/cm)	n/(mol)R.T.	γ (mJ/mol K ²)
0.30	-437			90.3	1.43 × 10 ⁺²³	49.1
0.26	-132	-285	-339	34.2	1.89 × 10 ⁺²³	39.5
0.22	-153	-142	-170	23.8	2.04 × 10 ⁺²³	41.1
0.18-2	-19.2	-85.9	-103	1.10	2.86 × 10 ⁺²³	19.0
0.18-1	-8.62	-27.8	-8.77	-0.00249	3.27 × 10 ⁺²³	32.4



↑ 表1: La_{1-x}Sr_xCoO₃における各組成における実験値 α_{xy}/T、σ_{xy}、キャリア数n、電子比熱係数 γ。式(2)における左辺は連続した2つの組成の α_{xy}/Tの平均値。右辺は γは平均値、と Δσ_{xy}/Δnから求めた。

← 図3: La_{1-x}Sr_xCoO₃における表1の実験データを使って独立に求めた式(2)の右辺と左辺の関係。直線は傾き0.85の原点を通った直線を示す。