

氏名	まえさわ澤邦彦
授与学位	工学博士
学位授与年月日	昭和50年3月25日
学位授与の根拠法規	学位規則第5条第1項
研究科、専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 応用物理学専攻
学位論文題目	ドハース・ファンアルフェン効果によるコバルトの フェルミ面の研究
指導教官	東北大学教授 高橋 実
論文審査委員	東北大学教授 高橋 実 東北大学教授 津屋 昇 東北大学教授 仁科雄一郎 東北大学教授 桂 重俊 東北大学助教授 猪苗代 盛

論文内容要旨

第1章 序論

強磁性3d遷移金属Fe, Co, Niのフェルミ面とこれら金属の結晶磁気異方性等の磁気的性質との関連性を調べることは、物性研究上興味ある課題であり、これまでにいくつかの研究がなされてきた。すなわち1963年AndersonとGoldはFeのホイスカーを用い、初めてドハース・ファンアルフェン効果(以下dH-vA効果と略記)の観測を行ったが、その後FeおよびNiについてもdH-vA効果および磁気抵抗効果の実験を行い、これら金属のフェルミ面の様子を調べた。

一方Coについては、つい最近までそのフェルミ面を調べる実験的研究はほとんどなされなかつた。その理由としては、高純度で欠陥の少ないCo単結晶を製作することが非常に難しかった

ことにある。ところで最近の結晶作製に関する技術の進歩は塊状 Co 単結晶の製作を比較的容易にしたため、Batallan と Rosenman は 1970 年最初に Co の dH-vA 効果の観測に成功した。以来 Batallan らおよび Anderson らのグループによって、これら 3d 遷移金属の dH-vA 効果の測定が詳細に行われ今日に至っている。しかしこれまでに報告された dH-vA 振動数の結晶方向依存性に関する実験結果から予想される Co のフェルミ面の形、大きさはエネルギー・バンド構造から理論的に求められるフェルミ面の形、大きさと定性的にも定量的にも一致していない。さらに Co は勿論 Fe, Ni についても、フェルミ面の様子と磁性との関連を検討した実験的、理論的研究はほとんどない。最近 Fe, Co, Ni のバンド構造を計算するにあたってスピン-軌道相互作用の効果を取り入れ、理論的に結晶磁気異方性定数およびその温度変化を求めようとする試みが、Mori によってなされているが、これは 3d 遷移金属の磁性とフェルミ面の形状との関連性を解明しようとする研究の一つとして注目されている。

以上のように強磁性 3d 遷移金属のフェルミ面に関しては、未だ興味ある未解決の問題が多い。そこで本研究では、結晶学的に高次の対称性をもち単純な磁化の結晶方向依存性を示す Co について、そのフェルミ面の様子と磁性との関連を調べるために系統的、且つ詳細な dH-vA 効果の測定を行った。

第 2 章 測定装置ならびに試料作製法

dH-vA 効果の測定にはパルス磁場法を用いることとした。そこでまづ内径 20 mm、長さ 150 mm のペークライトのボビンに $1.0 \text{ mm} \times 2.5 \text{ mm}$ の平角銅線を約 1400 回巻いた多層巻ソレノイド型パルス磁場発生用コイルを製作した。これによってパルスの半周期が 16.7 msec で、約 130kOe の高磁場（長さ 1 cm の範囲で 8×10^{-5} の均一度）をうることができた。また瞬間強磁場下における磁化の振動的变化（dH-vA 効果）は試料のまわりに、内径 1.1 mm、長さ 8 mm のボビンに $0.5 \text{ mm} \phi$ の銅線を 800 回巻いた感知コイルに誘起される起電力から測定した。但しこの感知コイルの外側には外部磁場の変化によって生ずる起電力を打消すための補償コイルを、感知コイルと直列逆向きに約 450 回巻いた。感知コイルで拾われた信号は、前置増幅器を通しシンクロスコープ上で観測できるようにした。

Co 単結晶は、純度 99.995% (Johnson Matthey Chemicals Limited) の素材を使用して、ブリッヂマン法および浮遊帶熔融法によって作製した。測定用試料には、この単結晶塊から棒軸が所定の結晶方位をもつように放電加工法によって直径 1.5 mm、長さ 8 mm の丸棒に切り抜いた後、電解研磨によって直径 0.5 mm、長さ 7 mm に整形した針状のものを用いた。なお試料の棒軸の結晶方位は X 線で決定したが、(1010) 面内の各針状試料の方位は C 軸からの傾きがそれぞれ $10^\circ, 20^\circ, 30^\circ, \dots, (1\bar{2}10)$ 面内のそれは各 $15^\circ, 30^\circ, 45^\circ, \dots$ となるようにした。

第3章

(i) 主要結晶軸方向における dH-vA 振動

磁化容易方向である C 軸方向に外部磁場を加えた場合、写真 1(a), (b) に示してあるような振

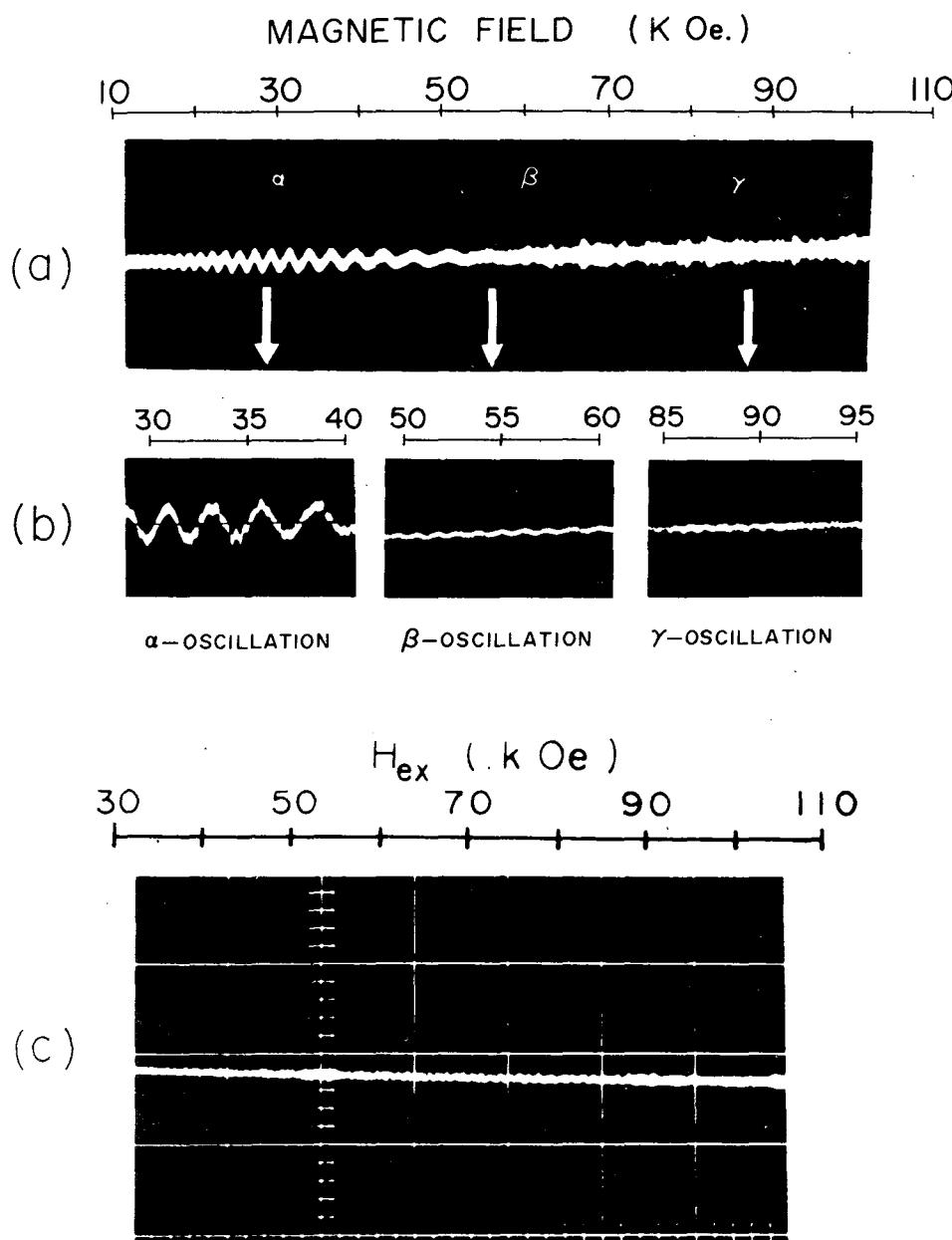


写真 1(a), (b) C 軸方向で観測された dH-vA 振動

(c) [1010] 方向で観測された dH-vA 振動

動数の異なる三つの振動が、 $20\text{ kOe} \sim 50\text{ kOe}$, $45\text{ kOe} \sim 60\text{ kOe}$ および $80\text{ kOe} \sim 95\text{ kOe}$ の磁場範囲内で観測できた。なお観測されたこれらの微細な振動の各山に番号 1, 2, …, n, ……をつけ、各山に対応している外部磁場 H_n の値を読みとり、反磁場および Co の飽和磁化を考慮して B_n を求め、n 対 $1/B_n$ の関係を求めた結果ほぼ完全な直線関係が得られた。そこでこの直線の勾配から dH-vA 振動の振動数を求めた結果、それぞれ $1.05 \times 10^6\text{ G}$, $3.65 \times 10^6\text{ G}$ および $11.7 \times 10^6\text{ G}$ となった。（以下これらを順に α , β , r 振動とする）

また外部磁場を、磁化困難方向である $[10\bar{1}0]$ 方向に加えた場合には、写真 1(c)に示すように、外部磁場 70 kOe 以上の範囲に dH-vA 振動が観測され、その振動数は $9.65 \times 10^6\text{ G}$ となった。

以上測定された種々の dH-vA 振動から、それらの振動数に対応したフェルミ面の \vec{B} に垂直な極大（または極小）断面積を求めた結果をまとめて Table 1 に示しておいた。

Table 1 主要結晶軸方向で観測された dH-vA 振動数
とそれに対応する断面積

結晶軸	振動	振動数 (10^6 G)	断面積 (10^{16} cm^{-2})
[0001]	α	1.05	0.010
	β	3.65	0.035
	r	11.70	0.112
[10 $\bar{1}$ 0]		9.65	0.092

(ii) α -振動の結晶方向依存性

外部磁場を C 軸方向に加えた場合に観測された α , β , r 各振動の $(1\bar{2}10)$, $(10\bar{1}0)$ 面内における結晶方向依存性を、試料軸が C 軸方向から種々傾いた結晶方位をもった試料を用いて観測した。その結果 C 軸方向で顕著に観測された三つの振動のうち β , r 振動は C 軸方向以外では検出されず、最も振動数の低い α 振動のみが観測された。すなわち、Fig. 1 に示してあるように $(1\bar{2}10)$ 面においては、 α 振動の振動数は C 軸となす角 θ が 0° から 30° の範囲の結晶方向で一定値 $1.05 \times 10^6\text{ G}$ を示し、 θ が 30° より大きな角をなす結晶方向では振動を観測することができなかった。

また $(10\bar{1}0)$ 面内においては α 振動の振動数は θ の増大とともに二次関数的に増加し、 θ が 70° でその値は $1.27 \times 10^6\text{ G}$ となった。しかし θ が 70° 以上の角度では dH-vA 振動は観測できなかった。ここで図の横軸の θ_B は、飽和磁束密度 \vec{B} の C 軸からの角度であるが、こ

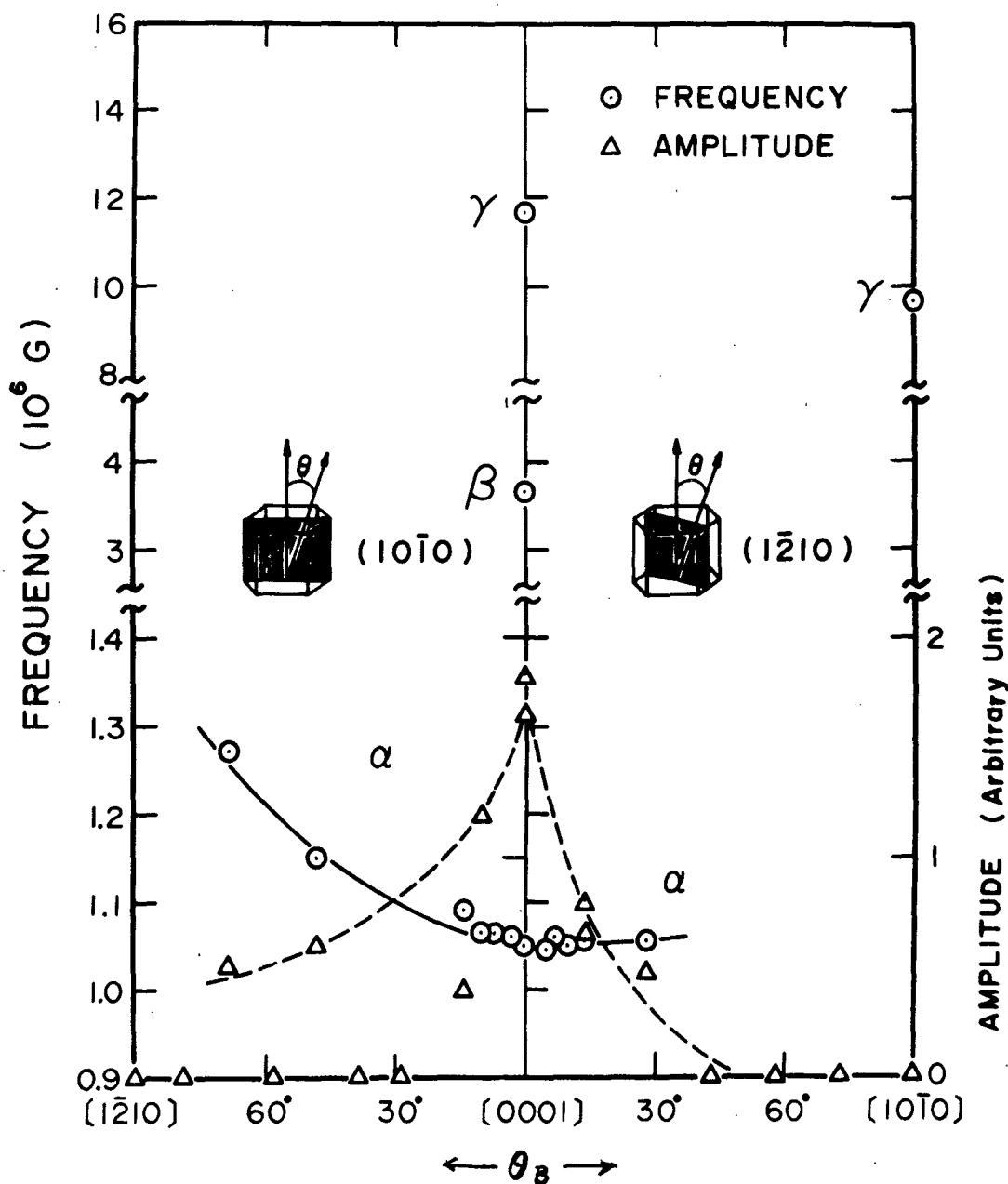


Fig. 1 $(10\bar{1}0)$ 面内および $(\bar{1}\bar{2}10)$ 面内におけるdH-vA振動数
および振幅の結晶方向依存性

これは結晶磁気異方性および反磁場のために \vec{M} の方向が \vec{H}_{hex} の方向から傾くことを考慮して計算から求めたものである。また振動振幅の結晶方向依存性は図に示されているように各方向で大きく変化し一義的な結果をうることができない。

(III) 振動振幅の温度および磁場の大きさによる変化

外部磁場をC軸方向に加えた場合に観測される α 振動の振幅の温度ならびに磁場の大きさによる変化を測定した。温度変化は1.35Kから4.20Kの温度範囲で行った。実験の結果4.20Kにおける振動振幅は1.35Kにおけるそれに較べ約20%減少した。そこでこの振動振幅の変化から α キャリアの有効質量 m^* およびDingle温度 T_D をLifshitz-Kosevichの理論に基づいて求めた。

その結果 m^* の値は $0.11m_0$ となった。ただしこゝで m_0 は電子の静止質量である。Table 2にはこの値を用いて α 振動に寄与しているフェルミ面のエネルギーおよび電子濃度を概算して求めた値を示してある。

Table 2 α 振動の振動振幅の測定から求めた諸データ
(Hex//Cの場合)

有効質量	m^*/m_0	0.11
フェルミエネルギー E_f		0.10 eV
キャリア数 n^*		$\sim 10^{19}/cm^3$ $(\sim 10^{-4}/atom)$
Dingle温度 T_D		20 K
散乱緩和時間 τ		$6 \times 10^{-14} \text{ sec}$ } (Hex = 45KOe)
$\omega_c \tau$		0.6

注) m_0 : 電子の静止質量

$$\omega_c = eB/m^*c$$

* n は α 振動に寄与しているフェルミ面を球と仮定し, Table 中の m^* , E_f の値を用いて求めた。

Fig. 2 はDingle温度を求めるために $1/B$ に対する $\ln a \propto [1 - \exp(-4\pi^2 kT/\beta^* B)]$ の関係をプロットしたものである。こゝで a は測定した振動振幅を任意目盛で示した値, $\beta^* = e\hbar/m^*c$ である。図にみるように、この関係は直線を示さないが、各点における勾配より求めたDingle温度は外部磁場45KOeにおいて20K, 30KOeにおいて36Kとなった。Table 2にはこのDingle温度の測定から得られた諸物理量を併せて示しておいた。

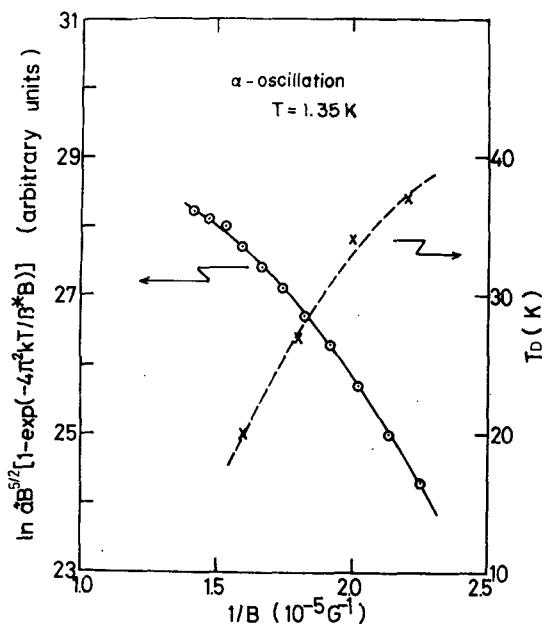


Fig. 2 α -振動に対するDingleプロット
(Hex // C)

第4章 考 察

以上の諸実験結果を総合すると、 α 振動に寄与しているフェルミ面はC軸に垂直な極値断面積がブリュリアンゾーンの底面の面積の約1/1000で電子濃度が1ポケット当たり約 10^{19} ケ/ cm^3 の非常に小さい面であることがわかった。しかし本研究で得られたdH-vA振動数の結晶方向依存性からだけではCoのフェルミ面の全体の形を予想することは困難である。他方Wakoh-YamashitaおよびIshidaらによって理論的に求められているフェルミ面は最も小さいものでも α 振動に対応したフェルミ面に比べて5倍以上も大きい。したがって本実験で観測された小さなフェルミ面の存在は現在の理論からは期待することが難しい。今後さらに精度のよいバンド構造の理論の発展および微細電子構造に関する精密な実験的研究が必要とされる。

第5章 総 括

本研究によって得られた成果をとりまとめて要約した。

審　査　結　果　の　要　旨

強磁性金属 Fe, Co, Ni の磁性に関しては、従来多くの研究がなされてきたが、これら金属の電子帯の微細構造、特にフェルミ面を直接実験的にしらべようとする試みは殆んどなされていない。

そこで著者は大きな一軸的磁気異方性を示す Co (純度 99.995%) について、ドハース・ファンアルフェン振動を系統的に測定し、そのフェルミ面と磁性との関連について研究を行った。本論文は、その研究成果をまとめたもので全文 5 章よりなっている。

第 1 章は緒言であり、本研究の意義と目的について述べている。

第 2 章では新たに設計、試作したパルス磁場法によるドハース・ファンアルフェン効果の調定装置—パルス磁場発生法、振動磁化測定法、クライオスタット及び試料回転装置—並びに Co 単結晶の製法と結晶方位の種々異なった針状試料の作製法について述べている。

第 3 章では、まずパルス磁場法によって観測される微細なドハース・ファンアルフェン振動の解析法と、振動に関与する電子の有効質量及び緩和時間の求め方を記述し、ついで (1\bar{2}10), (10\bar{1}0) の両面内のドハース・ファンアルフェン振動の結晶方向依存性並びに温度及び磁場の大きさによる変化を系統的に測定した結果について述べている。ここで著者はパルス法で初めてドハース・ファンアルフェン効果の観測に成功し、[0001] 方向に振動数がそれぞれ 1.05, 3.65, 11.7×10^8 G の α , β , γ と名づけられる 3 つの振動を見出している。

さらに 20 ~ 50 kOe の磁場範囲で観測される α 振動の振幅は、この磁場範囲で最も磁化し難い方向、すなわち [0001] 軸から約 70° の方向で消失すること、ディングル温度は 20 K ~ 35 K と非常に高い値を持つことを実験的に明らかにした。これらは物性物理学上重要な知見である。

第 4 章では以上の実験事実をもとにして、Co のフェルミ面の大きさ、形状について検討し、従来の理論と比較して両者の相違点を明らかにしている。

第 5 章は総括である。

以上要するに本論文は Co の電子帯構造について実験的研究を行い、いくつかの興味ある物性的事象を見出し、それを種々考察したもので、磁気物性工学に寄与するところ少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。