

磁気抵抗効果知っているつもり

Review on the MR Effect with Another Approach Differing from Conventional Ones

角野圭一 横浜国立大学名誉教授

K. Kakuno, Professor Emeritus, Yokohama National Univ.

The extraordinary magnetoresistance (MR) effect in polycrystalline ferromagnetic metals and alloys is reviewed with a different approach from conventional ones. It is shown that, with appropriate values of two parameters, this approach can almost perfectly reproduce the experimental results for both the extraordinary MR effect and the extraordinary Hall effect at the same time. These parameters are effective for analysis of experimental results, systematic labeling of results, design of materials and prediction of characteristics of newly synthesized materials. It is suggested that the two parameters allow quantitative discussion of the microscopic structural mechanisms of ferromagnetic materials based on experimental results.

Key words: extraordinary magnetoresistance effect, extraordinary Hall effect, equivalent magnetic flux density, exact solution of the Boltzmann-Bloch transport equation

1. はじめに

現代は情報通信の時代と言われており、このことを反映して磁気記録技術の研究は極めて盛んであり、磁気記録の高密度化性能は日進月歩である。この高密度化技術を支える一つの柱はMRヘッドであると認識されて以来、にわかに磁気抵抗効果(MR効果)は脚光を浴びることとなった。MR効果の発見は古く、研究の歴史は長い、応用上重要な現象として脚光を浴びるまでは、どちらかと言うと地味な研究という印象が強かった。その長い研究の歴史の中で、多くの著名な物理学者たちが研究に取り組んでいるが^{1)~7)}、それは主として物性学的興味からであった。今から十年ほど前までは、磁性研究者で、専門的にMR効果に取り組んでいた研究者は少なかった。それというのも、地味な研究という印象に加えて、手に負えそうな問題は著名な研究者たちによってすでにやり尽くされてしまっていると認識されたことによると推察される。しかし、この認識は本当なのだろうか？ もしそうであるならば、この現象の数量化がもっと進んでいてもよさそうなものである。例えば、物質の電氣的・磁氣的物性を特徴づける、十分に確立された幾つかの物理量の関数としてMR比を表すことができ、しかも、変数となっている物理量の値を適当に選ぶだけで個々の物質の個性を反映させ得る公式ができていて

もよさそうに思えるのだが、現実にはそのような公式は見当たらない。ここに「十分に確立された」とは「実験によって容易に知ることができる」と言い換えてもよい。「物質の電氣的・磁氣的物性の多くはその物質の電子状態、すなわち空間でのフェルミ面の形や状態密度や状態占有度などによって決められるので、MR比も電子状態が与えられれば計算できる。」との反論もあるかと思う。しかし、一般に遷移金属のフェルミ面は複雑な形状をしており、エネルギー的に重なりをもつ幾つかのバンドが形成されているので、個々の物質についてバンド構造の個性を一つ二つの変数で特徴づけて、単純にその数値を変えるだけで、物質個々のバンド構造の特性を表現するように定式化することは難しいことである。その上それぞれのバンドの電子が電気抵抗に複雑に寄与しているので、理想化された計算上の話としてもMR比を、電子状態という情報を用いて公式化するのは困難と思われる。まして理想化に程遠い現実の物質に関する実験結果を解析したり、整理したりするのに使えそうな公式を与えることはできそうにないようにみえるし、また、実際になように思われる。ある物質について、実験によって知ることのできる幾つかの物質定数が与えられた場合、その物質のMR比は幾らになるか予測できるような公式があれば、少なくとも実験家にとっては非常に有難いことだと思う。これが筆者の投げかけた疑問の中身である。加えて、磁気抵抗効果に関する用語にも首をひねりたくなるような混乱があるように思える。例えば異方性磁気抵抗効果(AMR)がそれである。この現象は単結晶試料に限って観測可能であるはずなのに、多結晶試料での実験結果についての記述にこの言葉が用いられていても誰も不思議がらない。「観測方向に磁化が平行のときと垂直のときとで電気抵抗が異なるから、異方性磁気抵抗効果でよいのではないか。」と主張する人もいるが、観測方向と磁化の方向との方位関係によって電気抵抗が異なるのは磁気抵抗効果の定義そのものであって、「異方性」が余分ではないか。真の意味での異方性磁気抵抗効果とは、この現象を観測するための電流を結晶軸に対してどの方向に流すかによって、MR比や、電流方向と磁化のなす角度に対する電気抵抗の角度依存性が異なる現象のことであると思う。このような現象は実際に単結晶試料では厳然と存在する^{8), 9)}。

もう一つ、言葉の節約なのであろうと善意に解釈しているのであるが、磁気抵抗が大きいとか、小さいとか、言っているのをよく耳にする。判断力のある専門家同士の話ならよいのだが、まだ初心の学生諸君がこの言葉を口にしているのを聞くと、つい「磁気抵抗じゃなくて磁気抵抗効果でしょう。」と口を挟みたくなる。以上述べたような疑問などがある、もう一度初心に戻って磁気抵抗効果を考えて見ようと、上のような表題を選んでみた。はじめに従来説を再吟味して問題点を整理し、次に従来説とは異なった切り口で磁気抵抗効果を取り扱って、最後に実験家の実験結果を解析し、整理するのに都合のよいMR比の公式を与え、その有効性を、ニッケル鉄およびニッケル銅合金試料についての実験結果を用いて検証する。

2. 磁気抵抗効果の現象論

以下の記述には、いたずらに複雑化するのを避けるため幾つかの限定事項をおくことにする。まず試料は強磁性金属・合金の多結晶体に限定する。実用されている材料はほとんど強磁性金属・合金の多結晶体であり、単結晶試料が実用されている例はほとんどない。また、単結晶試料の磁気抵抗効果を対象にする場合には真の意味での異方性磁気抵抗効果が観測され、現象は非常に複雑になる。したがって、いたずらに複雑化するのを避けるという趣旨で、単結晶の話は議論の対象から外すことにする。多結晶試料の場合には、試料を単磁区状態にしておきさえすれば、真の意味での異方性磁気抵抗効果は観測されず、電流を流す方向に無関係に同一現象が観測される。通常、ほぼ単磁区状態になっている細長い長方形の強磁性体試料の長手方向に、定電流源によって一定の電流を流しておき、磁化の方向を外部磁界によって変化させて磁気抵抗効果を観測する。測定端子間の電圧 V_r を測定することになるが、電流と磁化のなす角度を θ として、

$$V_r = V_0 + \Delta V_r \cos 2\theta \quad (1)$$

なる関係が得られる。定電流源によって一定の電流を流しているので、電流に沿う方向の電圧変化は抵抗の変化のようにみえるのでこれを磁気抵抗効果と呼んでいる。一方、試料幅間で電流と垂直方向の電圧 V_l を測定すると

$$V_l = \Delta V_l \sin 2\theta \quad (2)$$

なる関係が得られる。この現象を通称プレーナホール効果と呼んでいる（ホール効果とは全く別現象）*。 (1), (2) 式は

試料の大きさにも依存する式であって、物性的考察には不適当なので、試料の大きさに依存しない電界に関する表現に書き換えておく必要がある。試料の長手方向の端子間距離を l 、試料の幅を w として、 V_r/l および V_l/w を用いると観測される電圧の θ 依存性をそれぞれの電圧に対応する電界で表す式が得られる。この式において、 $(\Delta V_r/l) \cos 2\theta$ および $(\Delta V_l/w) \sin 2\theta$ はそれぞれ電流方向およびそれと垂直方向の電界の、 θ に依存する変化分を表すことがわかる。また、 $\Delta V_r/l = \Delta V_l/w$ が成り立つことが実験的に示されている¹⁰⁾ のでこれらの電界変化分の大きさを ΔE と書くことにすると、電界変化分ベクトル $\Delta \mathbf{E}$ は

$$\Delta \mathbf{E} = e_x \Delta E \cos 2\theta + e_y \Delta E \sin 2\theta \quad (3)$$

と表せる。ここに e_x は電流方向の単位ベクトルであり、 e_y は電流ベクトルと磁化ベクトルが作る平面内で電流に垂直方向の単位ベクトルを表す。 $(e_x \times e_m) \times e_m = (e_m e_x) e_m - e_m^2 e_x$ なる恒等式を用いると (3) 式は次のように変形できる。

$$\begin{aligned} \Delta \mathbf{E} &= 2\Delta E (e_x \cos \theta + e_y \sin \theta) \cos \theta - \Delta E e_x \\ &= 2\Delta E e_m (e_m e_x) - \Delta E e_x \\ &= 2\Delta E (e_x \times e_m) \times e_m + \Delta E e_x \end{aligned} \quad (4)$$

ここに $e_m = e_x \cos \theta + e_y \sin \theta$ は磁化方向の単位ベクトルを表す。(4) 式右辺最後の式第一項は、磁化の方向の変化に依存して変化する電界変化を表しており、したがって (4) 式は、この項を通して磁化の方向の変化に依存する電界変化 $\Delta \mathbf{E}$ が発生していることを示している。定電流源によって試料に一定不変の電流が流れている状態で、磁化の方向の変化に依存して変化する電界 $\Delta \mathbf{E}$ が発生して、電流に沿う方向の電界に重畳すれば、それは、磁化の方向変化に伴って電気抵抗が変化したように見える。これが磁気抵抗効果として観測されていると見ることができる。また、 $\Delta \mathbf{E}$ の電流に垂直方向の成分はプレーナホール効果として観測されることも明らかである。この考察からもわかるように磁気抵抗効果とプレーナホール効果は、違った方向から観測した一つの物理現象の二側面であるとみることができる。

すなわち、この現象の本質は磁化の方向の変化に伴って (4) 式で与えられるような電界 $\Delta \mathbf{E}$ が発生する現象と見ることができるので、両者をまとめて電流磁気起電力 (galvanomagnetic electromotive force, GEMF) 効果とも呼ぶべきものであるかもしれない。また、一定の緩和時間で特徴づけられる緩和時間近似で衝突過程が表される場合、電磁界存在下で、異なった緩和時間や有効質量をもつ2種類の荷電粒子群の運動を記述する式を用いて、この (4) 式を形式的に次のように導くことができる。群速度 v_1, v_2 および移動度 μ_1, μ_2 の2種類のキャリアによって電荷が運ばれるとする、いわゆる2キャリアモデルによる取り扱い¹¹⁾ である。電界 \mathbf{E} 、磁束密度 \mathbf{B} の存在下で運動するキャリアの定常状態における速度 v_1, v_2 は

$$v_i = \mu_i (\mathbf{E} + \mathbf{v}_i \times \mathbf{B}) \quad (5)$$

* プレーナホール効果については J.-P. Jan は "improperly called" (Solid State Physics, Advances in Research and Application, Vol. 5, p. 17, ed. by F. Seitz and D. Turnbull (Academic Press, New York, 1957)) と記述しており、また、I. A. Campbell と A. Fert は "this is a misnomer" (Handbook of Magnetic Materials, Vol. 3, p. 754, ed. by K. H. J. Buschow (North-Holland, Amsterdam, 1993)) と述べていて、いずれにしてもこの呼び名は不適当であるとしている。

$$v_2 = \mu_2(E + v_2 \times B) \quad (6)$$

与えられる。(5), (6) 式を v_1, v_2 について解くと

$$v_1 = \mu_1 E + \frac{\mu_1^2}{1 + (\mu_1 B)^2} \{E + \mu_1(E \times B)\} \times B \quad (7)$$

$$v_2 = \mu_2 E + \frac{\mu_2^2}{1 + (\mu_2 B)^2} \{E + \mu_2(E \times B)\} \times B \quad (8)$$

が得られる。ここに B は磁束密度ベクトルの絶対値を表す。

また、電流密度 j は

$$j = n_1 q_1 v_1 + n_2 q_2 v_2 = Q_1 v_1 + Q_2 v_2 \quad (9)$$

与えられる。ここに n, q , および Q はそれぞれキャリア数密度、電荷、およびキャリア電荷密度である。(7), (8), (9) 式より電界 E を電流密度 j で表す式を求めると次のようになる。

$$\rho j = E + F(j \times B) + G(j \times B) \times B \quad (10)$$

ここに

$$F = \frac{\mu_1^2 Q_1 + \mu_2^2 Q_2 + \mu_1^2 \mu_2^2 (Q_1 + Q_2) B^2}{(\mu_1 Q_1 + \mu_2 Q_2)^2 + \mu_1^2 \mu_2^2 (Q_1 + Q_2)^2 B^2} \quad (11)$$

$$G = \rho_0 \frac{\mu_1 \mu_2 Q_1 Q_2 (\mu_1 - \mu_2)^2}{(\mu_1 Q_1 + \mu_2 Q_2)^2 + \mu_1^2 \mu_2^2 (Q_1 + Q_2)^2 B^2} \quad (12)$$

$$\rho_0 = (\mu_1 Q_1 + \mu_2 Q_2)^{-1} \quad (13)$$

である。

(10) 式の第二項はホール電圧に対応する電界を表す。 B が零であるか j に平行であるときには (10) 式は

$$\rho_0 j = E \quad (14)$$

となり、これはオームの法則そのものである。ここに ρ_0 は、 B が零のときの ρ の値である。したがって、(10) 式は (14) 式で表されるオームの法則に従う電導現象に磁束密度 B の磁界が加えられて、ホール電界 $F(j \times B)$ と $G(j \times B) \times B$ なる電界が元々ある電界 E に新たに加わって新しい平衡状態が出現したことを表している。今の場合電流は定電流源によって駆動されているため変わることができないので、新しい平衡が成立するためには抵抗値が ρ_0 から別の値 ρ に変化せざるをえないことになる。 $G(j \times B) \times B = j G B^2 (e_x \times e_m) \times e_m$ であるから (4) 式と (10) 式において j が共通で B が磁化の方向に平行であるとする両式を比較して $\Delta E = j G B^2 / 2$ が成り立つことがわかる。すなわち、形式的ではあるが 2 キャリヤモデルを用いて実験から得られた GEMF 効果の式を導くことができた。もし (10) 式の F, G を構成する $\mu_1, \mu_2, Q_1, Q_2, B$ の物理的意味づけができるならばこの式を実験結果の解析や整理に用いることができるのだが、次に述べる理由によってこの式をそのような用途に用いることはできない。すなわち、第一に 2 種類のキャリアを何に対応させるのか？ といった基本的な問いに一義的な回答をすることができないこと、第二に 2 種類のキャリアの移動度や電荷密度を分離して知ることができないこと、第三に B は何による磁束密度と考えればよいのか？ という問いに答えられないことである。実測される

MR 比が (10) 式から得られるためには、数百テスラ程度の B の値が必要であることが示されるが、このように大きな磁束密度を生ずる磁束源を考えることは通常の磁束源を考える限り不可能である。ここにこの式の限界がある。

3. 磁気抵抗効果の微視的理論

ここで取り上げている強磁性金属・合金の磁気抵抗効果は本質的には金属の電気伝導の問題で、金属固体中に含まれる自由電子の流れを扱うことである。したがって、電子の集団運動を扱う Boltzmann-Bloch 方程式を出発点とする。空間的に一様な試料の定常状態を考えると Boltzmann-Bloch 方程式は

$$(\partial f / \partial t)_c = -(q / \hbar) E (\partial f / \partial k) \quad (15)$$

と書くことができる。ここに f は Fermi-Dirac 分布関数を表し、 $(\partial f / \partial t)_c$ は衝突による分布関数 f の時間的変化率を表す。また、 q および \hbar はそれぞれ電子の電荷と Planck 定数の $1/(2\pi)$ を表す。電子波は完璧な周期ポテンシャル中では波数ベクトル k をもった量子状態を保ち続けるがポテンシャルの乱れがあるとその乱れの性質や強さに依存した遷移確率 $P_{k \rightarrow k'}$ で波数ベクトル k' をもった量子状態に遷移する。これを衝突による電子の散乱と呼ぶ。 k の量子状態を保ち続ける限り、電気抵抗は零となるが電子の散乱があると零でない電気抵抗を示すことになる。ここに遷移確率 $P_{k \rightarrow k'}$ は、電子が k 状態から k' 状態へ、単位時間に遷移する確率をいう。 $(\partial f / \partial t)_c$ は、電子の散乱機構がわかればその散乱機構から計算される遷移確率を用いて計算できる。散乱機構としては格子振動や不純物によるポテンシャルの乱れが最も普通に考えられ、実際に、我々が電気抵抗と呼んでいるものはこれによるものとされている。この場合の電気抵抗は、電子同士および電子と格子点のイオンとの磁氣的相互作用は無視した取り扱いによって導き出されたものであるから、磁気抵抗効果は含まれていない。磁気抵抗効果を導き出すには、無視された磁氣的相互作用によるポテンシャルの乱れを取り入れた散乱機構を用いて $(\partial f / \partial t)_c$ を計算しなければならない。その場合の $(\partial f / \partial t)_c$ の計算の筋道は Smit の理論に従って以下に示す。Smit は Mott の理論を拡張して、強磁性体のいわゆる異常磁気抵抗効果に初めて説明を与えた。ここに異常磁気抵抗効果とは、自発磁化に起因する磁気抵抗効果の別称と考えてよい。まず Mott の理論から入って、それを拡張した Smit の理論によって異常磁気抵抗効果の説明を与えることにする。

Mott 理論⁵⁾ は、3d 遷移金属の抵抗率が周期律表上 3d 遷移金属のすぐ後にくる銅の抵抗率に比べて異常に高いこと、および 3d 遷移金属が強磁性状態になると抵抗率が下がることを説明する理論である。この理論によると 3d 遷移金属は、エネルギー幅が広く状態密度の小さい 4s バンドとエネルギー幅が狭く状態密度の大きい 3d バンドがエ

エネルギー的に重なりをもっており、フェルミ面が両バンド内に共有されているようなバンド構造をもっている。フェルミ面近くの4s電子(4sバンド内に属する電子)の有効質量はほぼ自由電子のそれに等しいが3d電子のそれは非常に大きいので4s電子の移動度は3d電子のそれに比べて非常に大きいことになり、その結果4s電子が主なキャリアとなっている。4s電子が格子振動や不純物によって散乱される場合、もし銅のように3dバンドに空きがなければ散乱される先は4sバンドだけであるが、遷移金属の場合3dバンドにも空きがあるため3dバンドにも散乱されるので、それだけ散乱確率が増えて抵抗率が大きくなる。また常磁性状態では3dバンド内に+スピン、-スピンに対して同程度の空きがあったのに、強磁性状態になると交換相互作用によって+スピン、-スピンのどちらかのフェルミ準位が相対的に高くなるため、低くなったスピンの占めている3dバンドの空きが減って、全体としての3dバンドへの散乱確率が減り、その結果抵抗率が減る。これが強磁性発生による抵抗率の減少であると説明している。

Mott理論では3dバンドが+スピン、-スピン固有状態で特徴づけられる二つのサブバンドからなっているのに対して、Smit理論¹²⁾ではそれぞれのバンドに属している電子のスピン-軌道相互作用によって3dバンドが最早±スピンの固有状態によって特徴づけることができなくなるとしている。この状態は+スピン固有状態で特徴づけられる波動関数と-スピン固有状態で特徴づけられる波動関数の一次結合として表され、それぞれの波動関数の係数はその固有状態の混合の度合いを示す混合度を定義することになる。この結果、スピン-軌道相互作用を考慮しないときには+スピンあるいは-スピンのどちらかしか散乱されなかったサブバンドへ、±どちらのスピンのみ、上に定義された混合度に依存するある有限の確率をもって散乱されるようになる。したがって、この混合度の違いによって抵抗率がいろいろの値をとることになる。混合度は、磁化が電流に平行の場合と垂直の場合で異なるため観測されるような磁気抵抗効果が得られるとしている。このSmit理論はその後幾人かの研究者によって精密化されている^{13)~17)}が、バンド構造の正確な情報は一般的には得られないし、また、バンド構造の正確な情報が得られたとしてもその情報から混合度を計算する過程で、研究者によってさまざまな仮定を設けているので、完全に任意性を排除して±スピンの混合度を算出することはできない。したがって、ある強磁性物質の磁気抵抗効果を十分に確立された物理量だけで、任意性を排除して記述する式をこの理論から導くことは困難である。要約すると、Smit理論で代表される微視的理論は現象の説明には極めて有効であるが、実験結果の解析や整理、さらにはこの効果を利用するための材料の設計にはこれらの微視的理論はあまり有効とはいえない。

4. 等価磁束密度法

これまで見てきたように、2キャリアモデルに基づく現象論は移動度、電荷密度とか磁束密度というようなよく確立した物理量のみを用いて記述されており、実験結果の解析や整理には形式的には都合よくできている。しかし、2キャリアモデルの2種類のキャリアに何を対応させるのかが一義的に決定できないこと、実験結果を説明するに足る磁束密度の発生源を特定できないこと、また、2種類のキャリアの移動度や電荷密度を分離して知ることができないことなど現象論の限界ともいえるべき欠点を抱えている。また、Smit理論に始まる、従来から定説視されている微視的理論はバンド構造の情報を基に組み立てられていて一見厳密に見えるが、ある物質のバンド構造は実験によって簡単に決められるものでもなく、またそれを理論的に導くにしても個々の物質によってさまざまな仮定や簡略化の過程が入ってくるので、正確には把握しにくく、よく確立した物理量を用いての定式化もしにくい。したがって、個々の物質に対して、個性を表すために値を変えるだけで済むような物理量のみを用いて、磁気抵抗効果を表現する式を作ることはほとんど不可能である。このように従来の現象論や微視的理論では、実験結果を解析したり整理したりするのに都合のよい式といったようなものを導くことはできなかった。以下に述べる手法では、従来の現象論のように任意性あるいは曖昧さを含むことなしに、また、従来の微視的理論のように直接バンド構造の情報を取り扱うことなしに、実験結果の解析や整理に都合のよい式を導き出すことを以下に試みることにする。ここで試みる手法は仮に等価磁束密度法と呼ぶことにする。

4.1 等価磁束密度

Smit理論によれば個々の物質のバンド構造の情報が与えられると電流の方向と磁化の方向のなす角度によって変化する抵抗率を計算することができる。また、磁気抵抗効果に伴ってプレーナホール効果が観測されることも実験からわかっている。この理論から導かれる電界-電流密度関係は、その要素 ρ_{ij} が磁化ベクトル方向の単位ベクトル α の関数として与えられるような抵抗率テンソル $[\rho]$ を用いて

$$\mathbf{E} = [\rho] \mathbf{j} \quad (16)$$

と表すことができる。ここに、 \mathbf{E} , \mathbf{j} はそれぞれ電界ベクトル、電流密度ベクトルである。 $\rho_{ij}(\alpha)$ の具体的な形はSmit理論によって計算できるわけであるが、今ここでは計算結果は必要ない。ここではその理論によって計算できるという確認のみが必要である。今、試料内に直交座標 x, y, z 軸を適当にとって、その x - y 平面内に磁化が飽和し、電流もこの平面内に流れているとすると(16)式は

$$\begin{aligned} E_x &= \rho_{11} j_x + \rho_{12} j_y \\ E_y &= \rho_{12} j_x + \rho_{22} j_y \end{aligned} \quad (17)$$

$$E_z = \rho_{13} j_x + \rho_{23} j_y$$

と書くことができる。(17)式の三番目の式はホール効果の式に相当するので、(17)式の三つの式全体で電流磁気効果を表していると見ることができる。次に、電流密度 \mathbf{j} の電流が流れているような導電物質が磁束密度 \mathbf{B} の磁界中に置かれていると想定する。電流密度ベクトルも磁束密度ベクトルも x - y 平面内にあるとすると 2 キャリヤモデルを用いて、電流磁気効果を表す電界-電流密度の関係は

$$\begin{aligned} E_x &= \{\rho_0 + \rho_1(B)\alpha_y^2\}j_x - \rho_1(B)\alpha_x\alpha_y j_y \\ E_y &= -\rho_1(B)\alpha_x\alpha_y j_x + \{\rho_0 + \rho_1(B)\alpha_x^2\}j_y \\ E_z &= -\alpha_y\rho_2(B)j_x + \alpha_x\rho_2(B)j_y \\ \rho_1(B) &= c_1\rho_H\mu B / \{1 + a(\mu B)^2\} \\ \rho_2(B) &= c_2\rho_H\{1 + b(\mu B)^2\} / \{1 + a(\mu B)^2\} \end{aligned} \quad (18)$$

で与えられる。ここに α_x および α_y はそれぞれ磁化の方向の単位ベクトルの x 成分および y 成分であり、 μ は 2 種類のキャリヤの平均移動度、 ρ_0 は零磁界における抵抗率、 ρ_H はホール抵抗率である。また、 a, b, c_1, c_2 は B を含まない無次元定数である。(17)式と(18)式とが全く同一の式である条件を求めると

$$\begin{aligned} \rho_0 &= \{\rho_{11} + \rho_{22} - \sqrt{(\rho_{11} - \rho_{22})^2 + 4\rho_{12}^2}\} / 2 \\ \rho_1(B) &= \sqrt{(\rho_{11} - \rho_{22})^2 + 4\rho_{12}^2} \\ \rho_2(B) &= \sqrt{(\rho_{13}^2 + \rho_{23}^2)} \end{aligned} \quad (19)$$

である。(19)式は B を ρ_{ij} の関数として表せるということを示している。 $\rho_1(B), \rho_2(B)$ において B の項は必ず μB の形で含まれており、しかもこの項は無次元数とならなければならない。したがって B は μ の逆数となるので磁束密度の次元をもつことになる。この B は磁束密度の次元をもつというだけで、(19)式の形からもわかるように必ずしも真の磁束密度とは限らないが、ここでこの B を等価磁束密度と定義することにする。ここで定義した等価磁束密度 B は Smit 理論におけるキャリヤの磁氣的散乱の効果をもった磁束密度の形で表したもので、あたかもこの磁束密度が存在して、それによってキャリヤの方向が変化したかのようにみなすことにほかならない。次の段階は、2 キャリヤモデルのような人工的な仮定を設けずに、電流磁気効果をこの B で表す式を導くことである。

4.2 電流磁気効果の定式化

波数ベクトル \mathbf{k} 、エネルギー ε をもった電子に電界 \mathbf{E} と等価磁束密度 \mathbf{B} が同時に加わった場合の状態推移を緩和時間近似を用いて表す Boltzmann-Bloch 方程式

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \frac{q}{\hbar} \left(\mathbf{E} + \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon}{\partial \mathbf{k}} \times \mathbf{B} \right) \cdot \frac{\partial f}{\partial \mathbf{k}} = \frac{f_0 - f}{\tau} \quad (20)$$

を出発点とする。 f は Fermi-Dirac 分布関数であり、 f_0 はその平衡状態における分布関数を表す。また、 q は電子の電荷、 t は時間であり、 τ は緩和時間である。定常状態を問題にしているので $(\partial f / \partial t) = 0$ である。 $f = f_0 - \delta$ とおき、 $\varepsilon = \hbar^2 \mathbf{k}^2 / (2m)$ であることを用いると(20)式は次の(21)式のように変形される。ここに m は電子の有効質量である。

$$\begin{aligned} \delta - \frac{q\tau}{\hbar} \left\{ \frac{\hbar^2}{m} \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} (\mathbf{E} \cdot \mathbf{k}) - \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \delta}{\partial \mathbf{k}} \right. \\ \left. - \frac{\hbar}{m} (\mathbf{k} \times \mathbf{B}) \cdot \frac{\partial \delta}{\partial \mathbf{k}} \right\} = 0 \end{aligned} \quad (21)$$

(21)式は $\delta(\mathbf{k})$ 、 $(\partial \delta / \partial k_1) = p_1(\mathbf{k})$ 、 $(\partial \delta / \partial k_2) = p_2(\mathbf{k})$ 、 $(\partial \delta / \partial k_3) = p_3(\mathbf{k})$ 、 $\mathbf{k} = (k_1, k_2, k_3)$ に関する 1 階の偏微分方程式である。1 階の偏微分方程式の確立された解法によると特性微分方程式

$$\frac{d\mathbf{k}}{ds} = \frac{q\tau}{\hbar} \left\{ \mathbf{E} + \frac{\hbar}{m} (\mathbf{k} \times \mathbf{B}) \right\} \quad (22)$$

の解 $\{k_1 = g_1(s), k_2 = g_2(s), k_3 = g_3(s)\}$ を用いると(21)式は

$$\delta + \frac{d\delta}{ds} = \frac{df_0}{ds} \quad (23)$$

に変形され、微分方程式(23)の解は

$$\delta(k_1, k_2, k_3) = \delta(s) = e^{-s} \int e^s (df_0/ds) ds \quad (24)$$

で与えられる。また、解 $\{k_1 = g_1(s), k_2 = g_2(s), k_3 = g_3(s)\}$ は具体的に次のように与えられる。

$$\mathbf{k} = k_1 \frac{\mathbf{B}}{|\mathbf{B}|} + k_2 \frac{\mathbf{E} \times \mathbf{B}}{|\mathbf{E} \times \mathbf{B}|} + k_3 \frac{(\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \times \mathbf{B}}{|(\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \times \mathbf{B}|} \quad (25)$$

$$\begin{aligned} k_1 &= (m/\hbar)(\mathbf{B} \cdot \mathbf{E}) \Omega / B^2, \\ k_2 &= -k \sin(\Omega + \gamma) + (m/\hbar)|\mathbf{E} \times \mathbf{B}| / B^2 \\ k_3 &= k \cos(\Omega + \gamma) \end{aligned} \quad (26)$$

$$\omega = d\Omega/ds = q\tau B/m \quad (27)$$

ここに、 γ と k は積分定数で互い同士および s に無関係なパラメータである。(22)式と(23)式の解(24)、(25)、(26)、(27)式は偏微分方程式(21)の厳密解を与える。このことは解を(21)式に直接代入することによっても確認できる。次にこれらの解を用いて k_1, k_2, k_3 の平均値 $\langle k_1 \rangle, \langle k_2 \rangle, \langle k_3 \rangle$ を求める。平均値は

$$\langle k_i \rangle = \int k_i \delta d k_1 d k_2 d k_3 \quad (i=1, 2, 3) \quad (28)$$

によって計算できる。この $\langle k_i \rangle$ を用いて電流密度 \mathbf{j} は

$$\begin{aligned} \mathbf{j} = \frac{nq\hbar}{m} \left\{ \langle k_1 \rangle \frac{\mathbf{B}}{|\mathbf{B}|} + \langle k_2 \rangle \frac{\mathbf{E} \times \mathbf{B}}{|\mathbf{E} \times \mathbf{B}|} \right. \\ \left. + \langle k_3 \rangle \frac{(\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \times \mathbf{B}}{|(\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \times \mathbf{B}|} \right\} \end{aligned} \quad (29)$$

と与えられる。この(29)式は、(27)式の中に現れている τ が s の関数として具体的に与えられていないという点を除いて、電流密度 \mathbf{j} の厳密な表現式となっている。ここで注目すべき点は、 τ には Smit 理論の中心である異方的散乱の効果は含まれておらず、その効果はすべて \mathbf{B} の効果と考えているという点である。言い換えると、Smit 理論では 3d 遷移金属のバンド構造の特殊性が伝導電子の異方的散乱という現象をひき起こしているとして、その効果をすべて緩和時間 τ に負わせて表現しているのに対して、本論では Smit 理論の異方的散乱の原因を等価磁束密度 \mathbf{B} で表し、その効果をこの \mathbf{B} で表現している。

4.3 具体的電界-電流密度関係

まず(27)式を用いて Ω を s の関数として表すことから

始める. Mott によると τ は

$$1/\tau = \text{const.} \{ \alpha + \sqrt{(E_0 - \varepsilon)/(E_0 - E_f)} \} \quad (30)$$

で表される¹⁸⁾. E_0 は d バンドの最上端のエネルギーを表し, α は, フェルミ準位 E_f の電子が s-d 遷移する確率に対する s-s 遷移する確率の比を表す. $\tau(\varepsilon)$ の概略は Fig. 1 に示す. $\tau(\varepsilon)$ 曲線は $E_f < \varepsilon < E_0$ でエネルギーに対して急峻に立ち上がっており, また $E_0 - E_f$ は E_f に比べて十分小さいので, $\tau(\varepsilon)$ 曲線として図中に破線で示す段関数で近似する. 図中 E_c は $\tau(\varepsilon)$ の値が $\tau_0 = (\tau_1 + \tau_2)/2$ となるエネルギーを示す. $E_0 - E_f$ は E_f に比べて十分小さいので $E_c \approx E_f$ としてよいであろう. このような近似を用いると

$$\Omega = (q\tau_1/m_1)Bs \quad \varepsilon < E_c (=E_f), \quad (31)$$

$$\Omega = (q\tau_2/m_2)Bs \quad E_c \leq \varepsilon$$

$$\tau(E_0)/\tau(2E_f - E_0) = \tau_2/\tau_1 = (\alpha + \sqrt{2})/\alpha$$

$$\tau_1 + \tau_2 = 2\tau_0 \quad (32)$$

となる. ここに m_1, m_2 はそれぞれ $\varepsilon = 2E_f - E_0$ から E_c までのエネルギーをもつ電子の平均有効質量と $\varepsilon = E_c$ から E_0 までのエネルギーをもつ電子の平均有効質量である. また

$$(m_2 - m_1)/(m_2 + m_1) = \xi \quad (33)$$

$$1/m_1 + 1/m_2 = 2/m_0$$

とにおいて (31), (32) 式を用いると Ω が s の関数として次のように与えられ, したがって k_1, k_2, k_3 が 3 独立変数 s, k, γ の関数として与えられたことになる.

$$\Omega_1 = \{2\alpha/(2\alpha + \sqrt{2})\} \omega_0 (1 + \xi)s = \omega_1 s \quad \varepsilon < E_c$$

$$\Omega_2 = \{2(\alpha + \sqrt{2})/(2\alpha + \sqrt{2})\} \omega_0 (1 - \xi)s = \omega_2 s \quad E_c \leq \varepsilon$$

ここに $\omega_0 = \mu_0 B$, $\mu_0 = (q\tau_0/m_0)$ である.

また, (26) 式を用いて (28) 式の積分における積分変数を (k_1, k_2, k_3) から (s, k, γ) に変換すれば, $\delta(\varepsilon)$ はエネルギー $\varepsilon = \hbar^2 k^2/(2m_0)$ の関数であるから (28) 式の積分は計算できて, 次のような結果が得られる.

$$\mathbf{j} = \zeta_1 \frac{(\mathbf{B} \cdot \mathbf{E})\mathbf{B}}{B^2} + \zeta_2 \frac{\mathbf{E} \times \mathbf{B}}{B} + \zeta_3 \frac{(\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \times \mathbf{B}}{B^2} \quad (34)$$

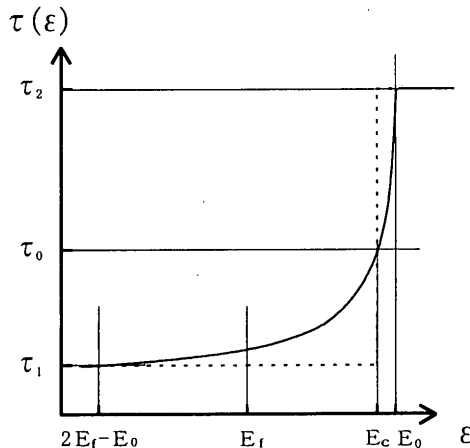


Fig. 1 Relaxation time $\tau(\varepsilon)$ plotted as a function of the energy of electrons ε in the neighborhood of Fermi energy E_f .

ここに

$$\zeta_1 = (\sigma_1 + \sigma_2)/2 = \sigma_0 = nq\mu_0 = \rho_0^{-1}$$

$$\zeta_2 = \{\sigma_1\omega_1/(1 + \omega_1^2) + \sigma_2\omega_2/(1 + \omega_2^2)\}/2$$

$$\zeta_3 = -\{\sigma_1/(1 + \omega_1^2) + \sigma_2/(1 + \omega_2^2)\}/2$$

$$\sigma_1 = 2\alpha/(2\alpha + \sqrt{2})\sigma_0$$

$$\sigma_2 = 2(\alpha + \sqrt{2})/(2\alpha + \sqrt{2})\sigma_0$$

である. (34) 式は \mathbf{j} を \mathbf{E} と \mathbf{B} で表す式であり, 恒等式 $\{(\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \times \mathbf{B}\} \times \mathbf{B} = -B^2(\mathbf{E} \times \mathbf{B})$ を用いると \mathbf{E} を \mathbf{j} と \mathbf{B} で表す式に書き換えることができる. \mathbf{B} が \mathbf{j} に平行の場合には

$$\rho_0 \mathbf{j} = \mathbf{E} \quad (35)$$

\mathbf{B} が \mathbf{j} に平行でない場合には

$$\rho \mathbf{j} = \mathbf{E} + 2\rho_0\omega_0(P/R) \frac{\mathbf{j} \times \mathbf{B}}{B} + \rho_0(Q/R) \frac{(\mathbf{j} \times \mathbf{B}) \times \mathbf{B}}{B^2} \quad (36)$$

$$P = \{2(\alpha^2 + \sqrt{2}\alpha + 1) - \sqrt{2}(2\alpha + \sqrt{2})\xi\}/(2\alpha + \sqrt{2})^2 + 8\alpha^2(\alpha + \sqrt{2})^2(1 - \xi^2)\omega_0^2/(2\alpha + \sqrt{2})^4 \quad (37)$$

$$Q = \{4\alpha(\alpha + \sqrt{2})/(2\alpha + \sqrt{2})^2\} \times \{\xi - \sqrt{2}/(2\alpha + \sqrt{2})\}^2 \omega_0^2 \quad (38)$$

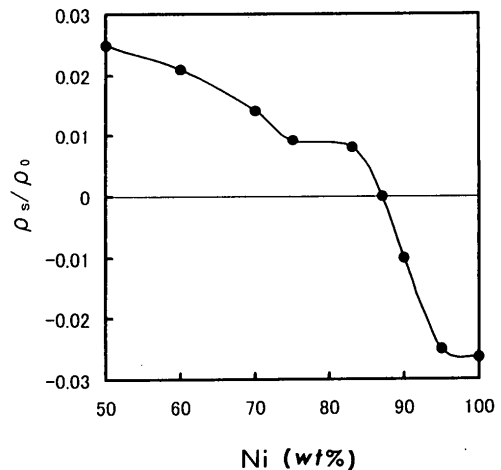


Fig. 2 Normalized extraordinary Hall resistivity ρ_s/ρ_0 plotted as a function of the nickel concentration in weight percent.

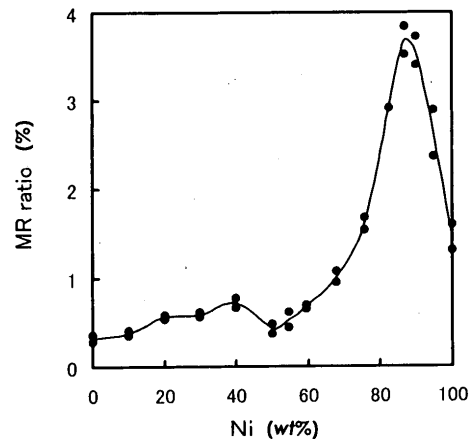


Fig. 3 MR ratio η plotted as a function of the nickel concentration in weight percent.

Table 1 MR ratio η and normalized extraordinary Hall resistivity ρ_s/ρ_0 of $\text{Ni}_x\text{Fe}_{1-x}$ alloy listed with the parameters ξ and ω_0 for comparison of calculated and experimental results. The subscripts cal and exp denote calculated and experimental results.

$\text{Ni}_x\text{Fe}_{1-x}$									
x	1.00	0.95	0.90	0.87	0.83	0.75	0.70	0.60	0.50
ξ	1.0690	1.0595	1.0421	1.0345	1.0315	1.0320	1.0253	1.0133	1.0028
ω_0	0.625	0.795	1.005	1.090	0.940	0.670	0.535	0.460	0.405
η_{cal}	0.0179	0.0261	0.0349	0.0379	0.0291	0.0160	0.0101	0.0069	0.0050
η_{exp}	0.018	0.026	0.035	0.038	0.029	0.016	0.01	0.007	0.005
$(\rho_s/\rho_0)_{\text{cal}}$	-0.0262	-0.0251	-0.0099	0.000042	0.0080	0.0092	0.0141	0.0209	0.0250
$(\rho_s/\rho_0)_{\text{exp}}$	-0.0263	-0.025	-0.01	0	0.0080	0.0092	0.014	0.021	0.025

$$R = 1 + 16\alpha^2(\alpha + \sqrt{2})^2\omega_0^2/(2\alpha + \sqrt{2})^4 \quad (39)$$

が得られる。(36)式の右辺第2項はホール効果を、第3項は磁気抵抗効果(GEMF効果)を表す。異常ホール抵抗率 ρ_s と MR 比 η は

$$\rho_s = 2\rho_0\omega_0(P/R) \quad (40)$$

$$\eta = Q/R \quad (41)$$

で与えられる。ここに ρ_0 は電流と磁化が平行の場合の抵抗率であり、実験的に求めることができる。また、 α は Mott の論文により与えられるので、 ξ および ω_0 に適当な数値を与えると ρ_s と η を一義的に決めることができる。

5. 検 討

ニッケル鉄とニッケル銅の薄膜について測定した手持ちのデータを用いて(40)、(41)式の検証を行う。ニッケル鉄合金のいろいろな組成の試料について ρ_s/ρ_0 と η をニッケル濃度の関数として Fig. 2, 3 に図示してある。また、 α の値としては Mott の論文の値 0.25¹⁸⁾を用いたがこの付近の値ならば 0.2 でも 0.3 でも ξ , ω_0 の数値が多少異なった値をとる点を除いて結果に大きな影響はなかった。計算結果と実験結果は Table 1 にまとめてある。次にニッケル銅の薄膜についても(40)式と(41)式を用いて実験結果を再現できるか否かを検証した。手持ちデータが3点しかなく数が少ないので、 ρ_s/ρ_0 , η のニッケル濃度依存性は図示しなかったが、その結果は Table 2 にまとめてある。この表からもわかるように計算結果と実験結果は驚くほどよく一致していることがわかる。これは実験から得られた MR 比と異常ホール抵抗率を ξ と ω_0 という二つのパラメータで望むだけ正確に再現できるということを示している。 ξ の値は有効質量と密接な量であり、この値がわかると有効質量を見積もることができる。また、 ω_0 は等価磁束密度と観測される移動度との積であるので、実験などでこれらの値を見積もることが可能である。このような観点から、実験結果の解析や整理、さらには新物質の設計にも(40)、(41)式が有効であることを示しているといえよう。計算に用いた ξ や ω_0 の値はニッケルの濃度とともに系統的に変化していることもわかる。また、実験結果を再現するのに採用した ξ の値が1よりわずかに大きい値となっていることは、 $m_2 = m_0/(1-\xi)$ が負で、絶対値が大きな値をとっていることを示している。これは d バンドのキャリアは有効質

Table 2 MR ratio η and normalized extraordinary Hall resistivity ρ_s/ρ_0 of $\text{Ni}_x\text{Cu}_{1-x}$ alloy listed with the parameters ξ and ω_0 for comparison of calculated and experimental results. The subscripts cal and exp denote calculated and experimental results.

$\text{Ni}_x\text{Cu}_{1-x}$			
x	0.90	0.83	0.55
ξ	1.0556	1.0644	1.0541
ω_0	0.656	0.556	0.285
η_{cal}	0.0180	0.01395	0.00361
η_{exp}	0.018	0.014	0.0036
$(\rho_s/\rho_0)_{\text{cal}}$	-0.01447	-0.01846	-0.00380
$(\rho_s/\rho_0)_{\text{exp}}$	-0.0145	-0.0185	-0.0038

量の大きな正孔であることを示唆している。次に μ_0 として銅の移動度に対応する $4 \times 10^{-3} [\text{m}^2/\text{V}\cdot\text{s}]$ という値を仮に当てはめてみると $\text{Ni}_{87}\text{Fe}_{13}$ 合金について B の値は 273 [T] となる。 μ_0 の値がこの値のまま一定であるとして B の値を各組成ごとに求めることができる。純ニッケルに対する B の値は 156 [T] となり、この値から鉄の増加に伴って B の値は増加してゆき、 $\text{Ni}_{87}\text{Fe}_{13}$ 合金で最大値をとって、以後鉄の増加とともに減少することがわかる。これらの B の値はすべて通常の強磁性物質の飽和磁化より2桁大きい値であるが、等価磁束密度は元々真の意味での磁束密度ではなく、Smit 理論の異方的な散乱の効果と同じ効果をひき起こす磁束密度と定義した過程を考慮すると不自然な結果ではない。また、鉄の増加に対する B 値のこの変化は鉄の増加に伴う MR 比の変化とよく似た変化となっている。これらの結果は今のところ MR 効果の微視的仕組みとどのようにかわり合っているのか、詳しい考察をしていないが、実験によりこの B を求めて先に検討した(19)式あたりを手がかりにして、バンド構造などの考察ができはしないか期待しているところである。この点については未開拓である。

6. 結 論

従来から定説化されていた磁気抵抗効果に対する Smit 理論における異方的散乱のメカニズムを、同じ効果を示す等価磁束密度による効果に置き換えることができることを示した。強磁性体の磁気抵抗効果を、電界とこの等価磁束密度が同時に加わった場合の電気伝導としてとらえ、二つ

のパラメータでニッケル鉄合金およびニッケル銅合金において観測される磁気抵抗効果と異常ホール効果を望むだけ正確に再現できることを示した。

参考文献

- 1) W. Thomson: *Proc. Roy. Soc.*, **8**, 546 (1857).
- 2) A. Sommerfeld and N. H. Frank: *Rev. Mod. Phys.*, **3**, 1 (1931).
- 3) R. Peierls: *Ann. Physik*, **10**, 97 (1931).
- 4) H. Jones and C. Zener: *Proc. Roy. Soc.*, **A145**, 268 (1934).
- 5) N. Mott and H. H. Wills: *Proc. Phys. Soc.*, **A153**, 699 (1936).
- 6) L. Davis: *Phys. Rev.*, **56**, 93 (1939).
- 7) F. Seitz: *Phys. Rev.*, **79**, 372 (1950).
- 8) S. Kaya: *Sci. Repts. Tohoku Imp. Univ.*, **17**, 1027 (1927).
- 9) W. Döring: *Ann. Physik*, **32**, 259 (1938).
- 10) K. Kakuno: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **33**, 1336 (1994).
- 11) C. Kittel: *Quantum Theory of Solids*, p. 241 (John Wiley & Sons, New York, 1967).
- 12) J. Smit: *Physica*, **16**, 612 (1951).

- 13) L. Berger: *Physica*, **30**, 1141 (1964).
- 14) V. A. Marsocci: *Phys. Rev. A*, **137**, 1842 (1965).
- 15) L. Berger and S. A. Friedberg: *Phys. Rev.*, **165**, 670 (1968).
- 16) Thomas *et al.*: *Physica*, **45**, 407 (1969).
- 17) R. I. Potter: *Phys. Rev. B*, **10**, 4626 (1974).
- 18) N. Mott and H. H. Wills: *Proc. Phys. Soc.*, **A153**, 368 (1936).

(2001年8月31日受理)



角野圭一 かくの けいいち

昭37 横浜国立大学工学部電気工学科卒,
同年 横浜国立大学工学部助手, 昭49
同講師, 昭51 同助教授, 昭58 同教授,
平13 3月退官, 同年 4月横浜国立大学
名誉教授, 現在に至る.
専門 磁性物理, 磁性材料 (工博)