

イットリウム二水素化物における電子－正孔補償状態と磁気抵抗

A Galvanomagnetic Study on Electron－Hole Compensation in Yttrium Dihydride Films

酒井 政道*、南保 岳*、中村 修**

Masamichi SAKAI, Take NANBO and Osamu NAKAMURA

We have investigated compensation characteristics of yttrium dihydride $\text{YH}_{2+\delta}$ ($\delta = -0.03$) films by measuring room-temperature galvanomagnetic properties under magnetic field B up to 1 T. The transverse voltages have been measured when a B has x and y components in addition to z component perpendicular to the sample plane. The transverse voltage shows nearly even character with respect to B , while odd characteristic could be expected from simple compensated case where the hole equals the electron only in concentration. The even character observed may be explained by letting the hole equal the electron not only in concentration but also in mobility.

Keywords: Compensation Metals, Yttrium Dihydride, Galvanomagnetic Property, Hall Resistivity

1. はじめに

電気伝導特性に対する磁場効果は、金属のフェルミ面形状、キャリア濃度・移動度等を明らかにするうえで有用な知見をもたらしてくれる。例えば、磁気抵抗 ρ_B とホール抵抗 ρ_H の磁場依存性を調べることによって、金属中の電子と正孔とが補償状態にあるかどうかを明らかにすることが出来る。¹⁾これは、補償金属と非補償金属では、 ρ_B と ρ_H が以下に述べるように全く異なる磁場依存性を示すからである。結晶運動量空間に

における磁場中軌道が閉じていて、正孔濃度と電子濃度が異なる場合には、 ρ_B は強磁場で飽和し、 ρ_H は磁場に対して非線形に変化する。一方、閉軌道でも正孔濃度と電子濃度が等しい場合(補償金属)には、 ρ_B は磁場の 2 乗に比例して、また ρ_H は磁場に正確に比例する。さらに、少し計算して分かることは、キャリア濃度のみならず移動度についても、正孔と電子の値が同じ場合には、 ρ_B が補償金属と同様磁場の 2 乗に比例するものの、 ρ_H は完全に消失するということである。このようにキャリア濃度のみならずキャリア移動度も、正孔と電子で等しい状態を本稿では、完全対称補償と呼ぶ。

補償状態はしばしば面心立方格子を有する 2 価金属、例えば Mg、Zn、Cd など観測されている。²⁾一方、完全対称補償がはたして実在するのかどうかについては興味深い問題であるが、我々の知る限りではこれまでに報告されていない。その理由のひとつは、 ρ_H が完全

*埼玉大学 工学部 機能材料工学科
Department of Functional Materials Science, Saitama University, 255 Shimo-Okubo, Sakura-ku, Saitama, 338-8570, Japan

**カシオ計算機(株) 要素技術統轄部 第三技術開発部
Core Technologies R&D Division, Casio Computer Co., Ltd., Imai 3-chome, Oume, 198-8555, Japan

ゼロであることを実験によって確認するのが一般的に難しいためと考えられる。我々は、現在、完全対称補償の実在性をイットリウム二水素化物 YH_2 に注目して調査している。本稿は、その経過報告である。

2. 測定原理

YH_2 薄膜の作成方法は参考文献 3 で詳しく述べているので省略する。ここでは、我々が提案する完全対称補償の検出方法を述べる。磁気抵抗 ρ_B とホール抵抗 ρ_H は、磁場方向が電流方向 (x 軸方向とする) と垂直の場合に定義される量である。その際の磁場方向を z 方向とする。その ρ_H がゼロかどうかを直接に調べる代わりに、本研究では、磁場方向を電流方向に対して垂直にせず、換言すれば、磁場方向に z 成分の他に x と y 成分を加えたときの磁気抵抗テンソルの非対角成分 ρ_{yx} に注目する。 ρ_{yx} に期待される通常補償と完全対称補償の違いが、 ρ_H にみられるそれらの違いとどのように異なるかについて説明する。

系が等方的であるとして、電子と正孔の電荷、有効質量、衝突緩和時間をそれぞれ $q_1, q_2, m_1, m_2, \tau_1, \tau_2$ とすると、電場 \mathbf{E} 、磁場 \mathbf{B} におけるキャリアの運動方程式は、

$$m_1 \frac{d\vec{v}_1}{dt} + \frac{m_1}{\tau_1} \vec{v}_1 = q_1 \vec{E} + q_1 \vec{v}_1 \times \vec{B} \quad (1)$$

$$m_2 \frac{d\vec{v}_2}{dt} + \frac{m_2}{\tau_2} \vec{v}_2 = q_2 \vec{E} + q_2 \vec{v}_2 \times \vec{B} \quad (2)$$

で与えられる。定常状態では、(1)式は、

$$\frac{m_1}{\tau_1} v_{1x} = q_1 E_x + q_1 (v_{1y} B_z - v_{1z} B_y) \quad (3)$$

$$\frac{m_1}{\tau_1} v_{1y} = q_1 E_y + q_1 (v_{1z} B_x - v_{1x} B_z)$$

$$\frac{m_1}{\tau_1} v_{1z} = q_1 E_z + q_1 (v_{1x} B_y - v_{1y} B_x)$$

となり、電流密度 $\vec{j}_1 = n_1 q_1 \vec{v}_1$ によって(3)式を書き直すと、

$$\vec{j}_1 = \tilde{\sigma}_1 \vec{E} \quad (4)$$

が得られる。ただし、 σ_1 は次式で表される電子伝導に関する磁気電気伝導度である。

$$\tilde{\sigma}_1 = n_1 q_1^2 \begin{bmatrix} \frac{m_1}{\tau_1} & -q_1 B_z & q_1 B_y \\ q_1 B_z & \frac{m_1}{\tau_1} & -q_1 B_x \\ -q_1 B_y & q_1 B_x & \frac{m_1}{\tau_1} \end{bmatrix}^{-1} \quad (5)$$

同様にして(2)式から

$$\vec{j}_2 = \tilde{\sigma}_2 \vec{E} \quad (6)$$

が得られる。正孔の磁気電気伝導度 σ_2 は、(5)式で添え字 1 を 2 に変えたものである。全電流密度 $\vec{j} (= \vec{j}_1 + \vec{j}_2)$ は、したがって、

$$\vec{j} = \tilde{\sigma} \vec{E} \quad (7)$$

である。ただし、

$$\tilde{\sigma} = \tilde{\sigma}_1 + \tilde{\sigma}_2 \quad (8)$$

である。磁気抵抗テンソル ρ は、磁気電気伝導度テンソルの逆行列 σ^{-1} によって与えられるので、その非対角成分 ρ_{yx} は、次式のようになる。

$$\rho_{yx} = \frac{\sigma_{yz} \sigma_{zx} - \sigma_{yx} \sigma_{zz}}{\sigma_{xx} \sigma_{yy} \sigma_{zz} + \sigma_{xy} \sigma_{yz} \sigma_{zx} + \sigma_{xz} \sigma_{zy} \sigma_{yx} - \sigma_{xx} \sigma_{yz} \sigma_{zy} - \sigma_{yy} \sigma_{xz} \sigma_{zx} - \sigma_{zz} \sigma_{xy} \sigma_{yx}} \quad (9)$$

ただし、 σ_{ij} は、磁気電気伝導度テンソルの ij 成分である。ここで、電流方向を x 方向とすると、 y 方向に発生する交差電圧 V_C は、電流値を I 、試料厚を d とすると、

$$V_C = -\rho_{yx} \frac{I}{d} \quad (10)$$

で与えられる。これに対してホール電圧 V_H は、磁場の x と y 成分がゼロであることに注意すると、

$$\rho_H = \frac{\sigma_{xy} (B_x=0, B_y=0)}{\sigma_{xx}^2 (B_x=0) + \sigma_{xy}^2 (B_y=0)} \quad (11)$$

で表されるホール抵抗を用いて

$$V_H = -\rho_H \frac{I}{d} \tag{12}$$

で与えられる。

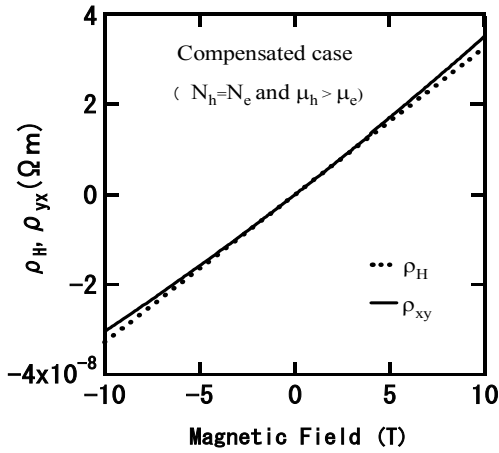


Fig. 1 Magnetic field dependences of ρ_H and ρ_{yx} when hole equals electron in concentration.

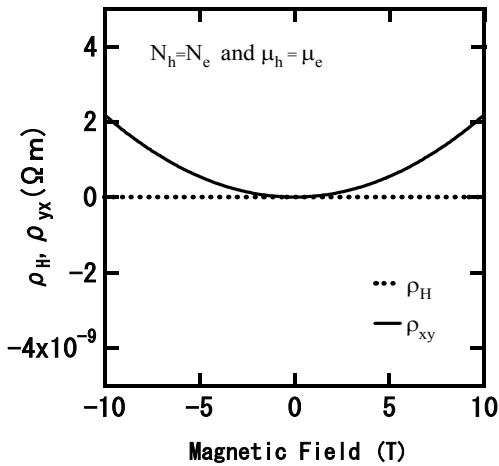


Fig. 2 Magnetic field dependences of ρ_H and ρ_{yx} when hole equals electron not only in concentration but also in mobility.

図1は、通常補償の場合について、 ρ_H と ρ_{yx} を磁場 B の関数として計算したものである。磁場の方向は変えずに大きさだけを変えた計算で、負の B 値は、磁場の向きが逆転することに対応する。最初にも述べた様に磁場が正確に z 軸に平行な場合（図中破線）、通常補償の ρ_H は任意範囲で磁場に正確に比例する。一方、磁場を z 軸から 4° 傾けた場合(図中実線)には、弱いながらも非線形な成分が混入するため、 ρ_{yx} は比例関係から僅かに変位する。

図2は、図1と同様な計算であるが、完全対称補償の場合である。最初にも述べた様に磁場が正確に z 軸に平行な場合（図中破線）では ρ_H は消失する。一方、

磁場を z 軸から 4° 傾けた場合(図中実線)には、 ρ_{yx} は有限の値を示すだけでなく、磁場に対して過関数的に振舞う。

通常補償と完全対称補償で、顕著に異なる点は、図1と2から分かるように、通常補償の ρ_{yx} は磁場に対してほぼ奇関数的に振舞うのに比べて、完全対称補償の ρ_{yx} は磁場が z 軸から僅かに傾くと、有限な値を示すだけでなく、磁場に対して過関数的に振舞うという点である。即ち、補償が完全対称補償かによって、磁場に対するパリティ性に明確な違いが生じることが分かる。原理的に、完全対称補償であることを証明するには ρ_H がゼロになることを示せばよいが、実際には測定誤差に影響されるのでそれは難しい。これに対して、 ρ_{yx} (磁場を z 軸から傾けた場合)の測定では、磁場に対するパリティ性に明確な違いが期待されるので、実験的に判定し易いと考えられる。

3. 測定方法

測定試料は、膜厚約 250 nm の $YH_{2+\delta}$ 薄膜であり、その面を xy 面、電流方向を x 軸の正方向とすると、磁場は z 軸から約 4° 傾けている。磁場の xy 面への射影ベクトルは、 x 軸から約 120° の方向である。図3の記号を使えば、 $\Phi \cong -4^\circ$ 、 $\theta \cong 120^\circ$ である。(10)式に対応する交差電圧の測定では、 x 軸方向に 6 mA、40 Hz の矩形電流を流し、位相検波方式によって概ね y 軸方向に発生する電圧を測定した。今回は、磁場範囲 $-1 \sim 1$ T、室温で測定した。

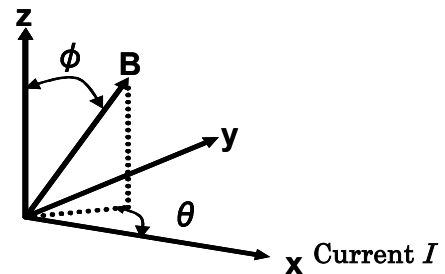


Fig. 3 Magnetic field and current directions are indicated with respect to the plane of sample (x - y plane).

4. 実験結果と考察

図4に $YH_{2+\delta}$ ($\delta = -0.03$)の測定結果を示す。磁場

の反転に対して交差電圧は符号を変えず、週関数的な挙動を示す。測定した電圧端子方向が電流方向と完全に垂直でないために、ゼロ磁場においても 1 mV 程度の電圧が発生する。図 4 では、実際に観測される交差電圧からゼロ磁場の電圧を差し引いてプロットしている。電圧端子が電流方向と垂直でない場合には、交差電圧は、 ρ の非対角成分だけでなく対角成分にも影響される。測定結果を非対角成分だけを考慮した(9)と(10)式を用いて解析するのは、正確さを欠くので、対角成分も考慮に入れた次式：

$$V_C = -(\rho_{yx} \cos \Omega - \rho_{xx} \sin \Omega) \frac{I}{d} \quad (13)$$

を用いて解析する。ただし、 Ω は、電圧端子方向が y 軸となす角である。また、 ρ_{xx} は、

$$\rho_{xx} = \frac{\sigma_{yy}\sigma_{zz} - \sigma_{yz}\sigma_{zy}}{\sigma_{xx}\sigma_{yy}\sigma_{zz} + \sigma_{xy}\sigma_{yz}\sigma_{zx} + \sigma_{xz}\sigma_{zy}\sigma_{yx} - \sigma_{xx}\sigma_{yz}\sigma_{zy} - \sigma_{yy}\sigma_{xz}\sigma_{zx} - \sigma_{zz}\sigma_{xy}\sigma_{yx}} \quad (14)$$

で与えられる。図 5 に(13)と(14)式による計算結果を示す。図中破線は正孔移動度が電子移動度より 2% 大きい場合で、実線は正孔移動度が電子移動度より 1% 大きい場合である。いずれも、正孔濃度と電子濃度は同じである。正孔と電子の移動度が高々 2% 異なるだけで、実験結果を再現するのが難しくなることが分かる。これらの測定と解析結果は、 $\text{YH}_{2+\delta}$ ($\delta = -0.03$) における正孔と電子では、キャリア濃度が等しいだけでなく、移動度も非常に近い値を持っていて、その違いは高々 2% 程度であることを示唆している。

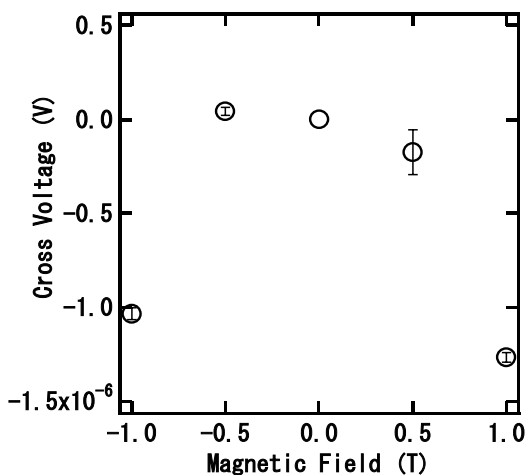


Fig. 4 Magnetic field dependence of a transverse voltage in $\text{YH}_{2+\delta}$ ($\delta = -0.03$) with geometrical conditions of $\Phi \doteq -4^\circ$ and $\theta \doteq 120^\circ$ in Fig. 3.

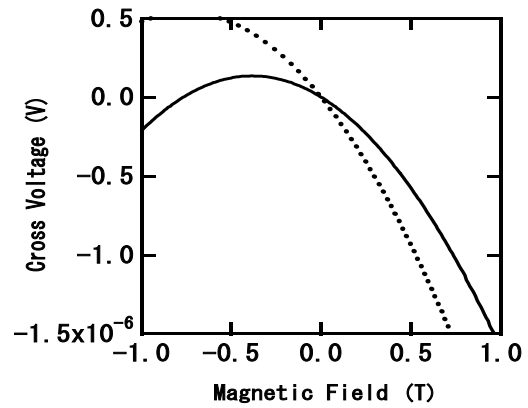


Fig. 5 Transverse voltages calculated by eq. (13). Dashed and solid lines are calculated when hole mobility is larger than electron mobility by a factor of 2% and 1 %, respectively, while the hole concentration is equal to the electron concentration.

5. 結論

正孔と電子のキャリア濃度が等しい金属を一般に補償金属というが、イットリウム二水素物 $\text{YH}_{2+\delta}$ ($\delta = -0.03$) では、さらに移動度もほぼ等しいと考えられる現象が、磁気電気輸送特性に観測された。このような正孔と電子の移動度が等しい補償状態が実在することを示すには、今後、確固たる実験的証拠をより多く示す必要があるだろう。

謝辞

本研究は、平成 16 年度 21 世紀総合研究機構研究プロジェクト(基礎研究)の援助のもとに遂行されたことを記し、謝意を表する。

参考文献

- 1) Reed, W. A. and Brennert, G. F., Topology of the Fermi Surface of Zinc from Galvanomagnetic Measurements, Physical Review, Vol. 130, pp. 565-569, 1963.
- 2) Fawcett, E. and Reed, W. A., Effect of Compensation on the Galvanomagnetic Properties of Nonmagnetic and Ferromagnetic Metals, Physical Review, Vol. 131, pp. 2463-2468, 1963.
- 1) Sakai, M., Kontani, T., Nakamura, O., Takeyama, K., Uwatoko, Y., Obi, Y. and Takanashi, K., Electrical Transport and Optical Properties of Hydrogen Deficient YH_2 Films, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 43, pp. 681-687, 2004.