

§ 1. 序論

Simon 等は Graphite acceptor Compounds の一つである C_nHNO_3 ($n=2,3,4$) の DHVA 効果の周期を説明するために、低温では インターカレント が超格子をつくり それをつくるポテンシアルによって新しいフェルミ面が出現するものと考えた。¹⁾ 以下では解析に便利な $C_{16}HNO_3$ を考えることにしよう。インターカレント が整列しているときには、フェルミ面 (正孔) は、独立なエッジ U, U' のまわりに画いた大小二つの円筒より出来ている。これ

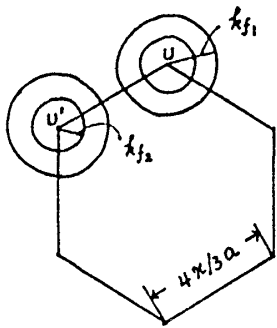


図 1. 第 2 ステージ $C_{16}HNO_3$ のブリルアン域とフェルミ面。
 $a = 2.46 \text{ \AA}$, $k_{f1} = 0.265 \text{ \AA}^{-1}$,
 $k_{f2} = 0.138 \text{ \AA}^{-1}$.

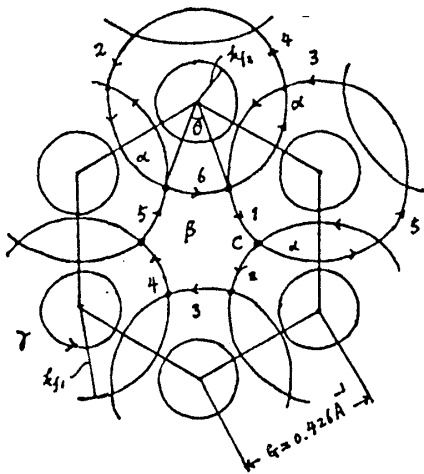


図 2. インターカレントの整列による $C_{16}HNO_3$ のフェルミ面。α, γ は正孔, β は電子軌道である。

$C_{24}SbCl_5$ では $C_{16}HNO_3$ では異なるような γ の lower band (γ) も存在する。

らのバンドの分散関係は, Blinowski-Rigaux モデルにより与えられる。²⁾ 図 1 に示すように U, U' のまわりのフェルミ面は重なっているから、DHVA 効果の周期は 2 個観測されるのみであり、Simon 等の観測した多数の周期は説明出来ない。¹⁾

Fuzellier³⁾ によると、低温において インターカレント HNO_3 が、グラファイト母体の格子と commensurate な ordering をしめ、単位格子は、グラファイトのそれの 16 倍 ($4a \times 4a$) に拡大され、従って、ブリルアン域は 1/16 の面積に減少する。新しい、ブリルアン域において、 k_{f1} , k_{f2} の円を画くと、 k_{f1} の円は隣り同士重なり合い、新しいフェルミ面が形成される。^{1,3)}

これらのことから、低温では、DHVA の周期の強度を評価し、実験と矛盾しないことを示した。⁴⁾ Simon 等は、図 2 に与えられている、α, β, γ 軌道およびそれらのハーフニックス $2\alpha, \beta-\alpha, \beta-2\alpha, \dots$ を観測される周期と関連つけた。

もし、図 2 のようなフェルミ面が形成されているとすれば、磁場を C 軸方向に加えときの、電流磁気効果も図 1 の場合に対するものは著しく変った振舞を呈するはずである。以下において、Falicov-Liebert の理論⁵⁾ に従って、伝導度テンソル σ_{xx}, σ_{xy} の表式を求めよう。

γ 軌道の正孔は、 σ_{xx}, σ_{xy} に単に付け加えておけば

よいので考慮しない。田沼等は $C_{24}SbCl_5$ について、同様の DHVA 効果を観測している。⁶⁾ これらの理論を拡張することにより論ずることが出来る。

更に、図2に示す現象が期待される。

§2. Magnetic Breakdown とともなうときの電流磁気効果

図2で示されている点Cにおいては、キャリアはある確率 Q で、ブランク交差 (BRと略記) の1→2なる経路をとる一方、確率 P で Magnetic Breakdown (MBと略記) をして自由正孔の軌道をとる可能性もあるから、このような事情を考慮した電流磁気効果の理論が必要となるが、これは Falicov-Sierad によって与えられている。⁵⁾

図2から容易に分かるように、軌道の相互な segments は、レンス軌道 α が関係した6個と、 β -軌道の1~6を含めて、12個存在する。従って、segmentsの交差での遷移を記述するマトリックスは 12×12 の行列となり複雑となるので、以下の簡単化をする。

レンス軌道 α を無視し、BRの確率 A 、MBの確率 B に α -軌道の存在を無視しておく、 α -軌道の伝導率への寄与は別に考慮する。このようにすると、計算は簡単化される。

すなわち、

$$\begin{cases} A = \text{---} = \text{---} + \text{---} + \text{---} + \dots = Q + QP^2 + Q^3P^2 + Q^5P^2 + \dots = Q + \frac{QP^2}{1-Q^2} = Q + \frac{QP}{1+Q} \\ B = \text{---} = \text{---} + \text{---} + \text{---} + \dots = P^2 + P^2Q^2 + P^2Q^4 + \dots = \frac{P^2}{1-Q^2} = \frac{P}{1+Q} \end{cases} \quad (2.1)$$

また、 $P+Q=1$ なる関係を用いて、(2.1)より直ちに $A+B=1$ が得られる。よく知られているように、MBの確率 P は、次式で与えられる。

$$P = \exp(-H_0/H), \quad H_0/H \cong \Delta E^2 / \hbar \omega E_F, \quad (2.2)$$

ΔE は、BR、MBに因るキャリアのエネルギー、 ω はサイクロトロン角周波数、 E_F はフェルミエネルギー。軌道セグメント間の遷移を与える Transition Matrix M は以下のように与えられる。

$$M = \begin{pmatrix} 1 & 2 & 3 & 4 & 5 & 6 \\ \begin{matrix} 0 & 0 & B & 0 & 0 & A \\ A & 0 & 0 & B & 0 & 0 \\ 0 & A & 0 & 0 & B & 0 \\ 0 & 0 & A & 0 & 0 & B \\ B & 0 & 0 & A & 0 & 0 \\ 0 & B & 0 & 0 & A & 0 \end{matrix} & \begin{matrix} 1 \\ 2 \\ 3 \\ 4 \\ 5 \\ 6 \end{matrix} \end{pmatrix}, \quad (1 \sim 6 \text{ は 図2の軌道の segments 番号}). \quad (2.3)$$

Chambers の path integral の方法を MB が存在する場合に拡張して、伝導度テンソル σ_{ij} は次のようにあらわされる。⁵⁾

$$\sigma_{ij} = -\frac{2e^2s}{(2\pi)^3\hbar} \sum_{\epsilon=1}^n \int dE \frac{df_0}{dE} \int dx_2 \int_{t_0}^{t_0} v_i(t; \ell) I_j(t; \ell) dt', \quad I_j(t; \ell) = e^{-t/\tau} \left\{ \int_0^{t'} dt'' v_j(t''; \ell) e^{t''/\tau} + K_j(\ell) \right\}. \quad (2.4)$$

($s = eH/\hbar c$, $n=6$, t_0 : 11個の segment を通過するのに要する時間),

$$K_j = \begin{bmatrix} k_j^{(1)} \\ \vdots \\ k_j^{(n)} \end{bmatrix}, \quad V_j = \begin{bmatrix} V_j^{(1)} \\ \vdots \\ V_j^{(n)} \end{bmatrix}, \quad V_j(r) = \int_0^{t_0} v_j(t, r) e^{it/\tau} dt. \quad (2.5)$$

とおく。

$$K_j = \sum_{p=1}^n M^p V_j e^{-pt/\tau} = M e^{-t/\tau} [1 - M e^{-t/\tau}]^{-1} V_j. \quad (2.6)$$

$v_{x,y}(t, l)$ は l -番目 ($l=1, 2, \dots, 6$) の segment の速度と 時 t での l による速度成分である。
 v_F は速度を v_F とする。

$$v_x(t, l) = -v_F \sin(\omega t + \phi_l), \quad v_y(t, l) = v_F \cos(\omega t + \phi_l), \quad (2.7)$$

と与えられる。

$$[1 - M e^{-t/\tau}]^{-1} \equiv Y = \begin{bmatrix} \ddots & \vdots & \vdots \\ \dots & Y_{lr} & \dots \\ \vdots & \vdots & \ddots \end{bmatrix} \quad \text{とおく。} \quad Y_{ij} = Y_{i+p, j+p} \pmod{6} \quad \text{なる関係があり、独立な}$$

Y_{ij} の値は つぎのようになる。

$$\begin{cases} Y_{11} = (1 + 3a^2b + b^3)\Delta^{-1}, & Y_{21} = (-a + 2ab^3 - 2a^3b)\Delta^{-1}, & Y_{31} = (a^2 - 2a^2b^3 + a^4b + b^2 + b^5)\Delta^{-1}, \\ Y_{41} = -(a^3 + 3ab^2)\Delta^{-1}, & Y_{51} = (a^4 - b - b^4)\Delta^{-1}, & Y_{61} = (-a^5 + 2a^3b^2 + 2ab - ab^4)\Delta^{-1}, \\ \Delta = -a^6 + 3a^4b^2 + 6a^2b - a^2b^4 + 2b^3 + b^6 + 1, & a = -A e^{-t/\tau}, & b = -B e^{-t/\tau}. \end{cases} \quad (2.8)$$

また $K_j(l)$ は

$$K_j(l) = e^{-t_0/\tau} \sum_{p=1}^6 (A Y_{l-1,p} + B Y_{l+2,p}) V_j(p). \quad (2.9)$$

以上の結果を利用して、 σ_{xx}, σ_{xy} を磁場の関数として計算できる。(2.4)の表式において、

$v_i(t, l) I_j(t, l)$ は速度相関を与えてくれる。 $I_j(t, l)$ の $\{\dots\}$ の第1項からは、同じ segment

内の相関があらわれ、他方 $K_j(l)$ は異なる segments 間の相関を与えてくれる。MBに関係する項である。 $M e^{-t/\tau} = \delta_{l, r+1}$ とすれば、MBを考慮しない通常の Chambers の式に帰着する。

$\omega\tau \gg 1$ の場合に興味があるので、それに対して、 σ_{xx}, σ_{xy} の表式を求める。初めに注意しておきたいのは、ここには レンズ軌道 α 以下の寄与が含まれていない。

さて、ローレンツの式より、 $\hbar \int dk_s = (e/c) v_F H t$ 。 ($\int dk_s$ は軌道に沿った積分)

$$t_0 = \hbar \theta / S v_F, \quad (S = eH/\hbar c) \quad (\theta \text{ は } l \text{ に関する角度}) \quad (2.10)$$

より、 $t_0/\tau = \theta/\omega\tau \ll 1$ とする。 $e^{-t/\tau} \doteq 1$ として、

$$\begin{cases} \sigma_{xx} \doteq \sigma_{xx}^{(0)} \left(\frac{3}{\pi} \right) (1 - \cos\theta) \left\{ 1 + \frac{3(A-B)(4B-1)}{|\omega\tau| B^2 A} \theta \right\}, & \sigma_{xx}^{(0)} = \frac{Ne^2\tau}{m(1+\omega^2\tau^2)}, \\ \sigma_{xy} \doteq |\sigma_{xy}^{(0)}| \frac{3}{\pi} \left\{ (\sin\theta - \theta) + \frac{3\sqrt{3}(B-A)}{|\omega\tau| B^2 A} \theta (1 - \cos\theta) \right\}, & \sigma_{xy}^{(0)} = \sigma_{xx}^{(0)} |\omega\tau|. \end{cases} \quad (2.11)$$

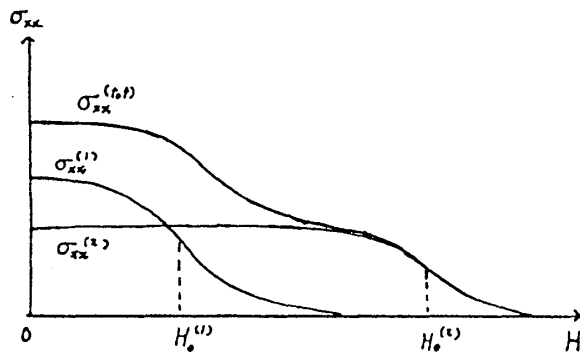
σ_{xx} の $\{\dots\}$ の中の第2項に注目しよう。 $H_0 > H$ である。(2.1), (2.2) より $A > B$, $4B > 1$ なる関係があり、正の値をとるが、十分磁場が強くなるときは、 $A \approx 2H_0/H = 2\omega_0/\omega$ ($\omega_0 = eH_0/mc$), $B \approx 1$ となつて $\{\dots\} \approx 1 - 90/\omega_0\tau \approx 1$ となる。一方、 σ_{xy} の $\{\dots\}$ も同じ。

第1項は負であり、第2項は $H_0 > H$ のとき、 $H_0 < H$ のとき正となり、磁場増大と共に、電子軌道 β の寄与が減つて、自由正孔の軌道への遷移を主としていつて考えらる。

一般的な考察から分るように、⁵⁾ MBの効果は、緩和時間 τ の代りに有効緩和時間 τ_{eff} を導入すると同じである。 τ_{eff} は

$$1/\tau_{eff} = 1/\tau + C\omega, \quad (C \sim 1). \quad (2.12)$$

従つて、磁気抵抗 $\rho = \sigma_{xx}/(\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2)$ は $\omega\tau > 1$ なる磁場で飽和値 (遷移の τ) になく、より大きい磁場 $\omega\tau_{eff} > 1$ で遷移される。田沼等の研究は $C_{24}SbCl_5$ ⁶⁾ で upper band の breakdown field $H_0^{(u)}$ は小さく、lower band のそれはより大きいと考えられている。もし両者の差がかなり大きければ、図3のように、



$\sigma_{xx}^{(t)} = \sigma_{xx}^{(u)} + \sigma_{xx}^{(l)}$ が2段階の減少を示す可能性が示るかも知れない。⁷⁾

ここで全く考えがつかぬ α -軌道の寄与を加えておかなければならない。これを単に相加的に加えておけば良いのは、粗つぱな近似であることに留意しておく必要がある。

図.3 2種類のバンド 1, 2 からなる breakdown field $H_0^{(u)}$, $H_0^{(l)}$ をもつ σ_{xx} の H の振舞。

文献

- 1) Ch. Simon, F. Batallan, I. Rosenman and H. Fuzellier: *Phys. Rev.* **23** (1981) 2386.
- 2) J. Blinowski and C. Rigaux: *J. Physique*: **41** (1980) 667; J. Blinowski, N. H. Hau, C. Rigaux and J. P. Vieren: *J. Physique* **41** (1980) 47.
- 3) I. Rosenman, F. Batallan, Ch. Simon and H. Fuzellier: *Proc. 15th Int. Conf. Phys. Semic. Kyoto*, 1980, *J. Phys. Soc. Japan* **49** (1980) Suppl. A 923.
- 4) 杉原 正: 「インターローンの機構と特性」 第1回研究会報告書 (1981) p. 44.
- 5) L. M. Falicov and P. R. Sievert: *Phys. Rev.* **135** (1965) A88.
- 6) 田沼静一, 高橋文, 家系34: 「インターローンの機構と特性」 第1回研究会報告書 p. 40
- 7) 田沼教授の suggestion.