

## Cr-Te 系単結晶の磁気光学スペクトル

### Magneto-Optical Spectra in Single Crystals of Cr-Te Compounds

阿萬康知\*・平井政和・村山幹人・佐藤勝昭

東京農工大学工学部, 東京都小金井市中町 2-24-16 (☎184)

Y. Aman, M. Hirai, M. Murayama and K. Sato

Tokyo Univ. of Agriculture and Technology, 24-16, Naka-cho 2-chome, Koganei, Tokyo 184

Optical and magneto-optical properties of single crystals of  $\text{Cr}_2\text{Te}_3$  and  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  grown by chemical vapor transport technique were studied. Spectra of normal incidence reflectivity were measured at room temperature on both samples. On  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$ , magneto-optical spectra were also measured. Spectra of the diagonal and off-diagonal elements of the conductivity tensor were obtained from the measured spectra. These were compared with those estimated from density of state curves calculated by Dijkstra and showed appreciable agreement. From these results it is concluded that transitions from  $\text{Cr}_{3d}$  to C. B. for majority spins and  $\text{Te}_{5p}$  to  $\text{Cr}_{3d}$  for minority spins are responsible for the observed optical absorption and magneto-optical effects.

#### 1. はじめに

Cr-Te 系化合物は化学式  $\text{Cr}_{1-x}\text{Te}$  で表される化合物群を  $x$  の広い範囲に渡って形成し, いずれも金属的な伝導性を持つ強磁性体である。その中で  $x \leq 0.25$  の組成のものは室温で磁化を持ち, そのキュリー温度は  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  ( $x=0.25$ ) でおよそ 316 K である<sup>1)</sup>。その結晶構造は Ni-As 構造を基本としており, Cr の空格子点の配列によりその組成が決まる。Cr-Te 系の磁気光学効果は 1970 年代に薄膜について研究されたが, 単結晶については報告がなかった<sup>2)</sup>。

我々は, Cr-Te 系化合物の電子構造と磁気光学効果の関係性を明らかにするため, その単結晶作製および光学的, 磁気光学的評価を行った。

#### 2. 試料作製および結晶解析

試料はヨウ素を輸送媒体に用いた気相化学輸送法で作製し,  $\text{Cr}_2\text{Te}_3$  ( $3 \times 3 \times 0.1 \text{ mm}^3$ ),  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  ( $2 \times 1 \times 0.5 \text{ mm}^3$ ) の単結晶が得られた。試料作製における温度勾配は  $\text{Cr}_2\text{Te}_3$  において高温側 1000°C 低温側 800°C,  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$

において高温側 1000°C 低温側 820°C とした<sup>1)~3)</sup>。

結晶の組成の確認は X 線解析によって行った。その結果  $\text{Cr}_2\text{Te}_3$ ,  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  ともそれぞれ期待した組成比のものが得られていることが確認され, その成長面は両試料とも  $c$  面であった。光学測定は, 自然成長面の  $c$  面について行った。

#### 3. 測定

以下には, 反射率スペクトル, 磁気光学スペクトルの測定について述べる。

測定はすべて室温で行い, 磁気光学効果は室温で磁化を持つ  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  についてのみ測定した。

##### 1) 反射率スペクトル

測定範囲は 300-4500 nm でこの領域を二つに分けて測定した。

- ① 300-2400 nm: 2 チッパー法反射率測定装置
- ② 2400-4500 nm: 赤外線顕分光装置

##### 2) 磁気光学スペクトル

カー回転角, 楕円率の測定を行った。測定には円偏光変調法を用いており, 測定範囲は 400-1800 nm で, 印加磁場は 5 kG とした<sup>4)</sup>。校正には He-Ne レーザー波長でのファラデー変調法による測定値を用いた。

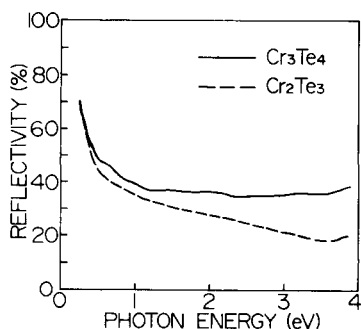
#### 4. 測定結果および考察

Fig. 1 に  $\text{Cr}_2\text{Te}_3$ ,  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  の反射率スペクトルの測定結果を示す。両試料とも低エネルギー側に向かって反射率の増大する金属的スペクトルを持つことが確認される。

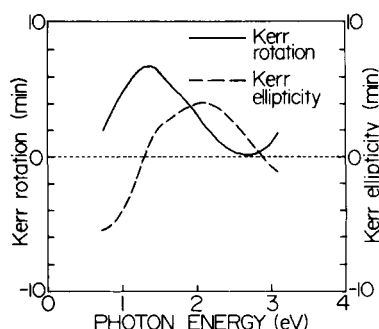
$\text{Cr}_3\text{Te}_4$  については磁気光学効果の測定を行った。5 kG のもとで測定を行ったが, その程度の磁場では磁化は完全には飽和せず, 残留磁化もほとんど持たなかった。

Fig. 2 に磁気光学スペクトルを示す。カー回転角が 293 K, 5 kG のもと 1.3 eV 付近に約 7 分のピーク値を持ち, その点で楕円率が零点を横切っているのが確認で

\* 現所属: リコー(株)



**Fig. 1** Reflectivity spectra in  $\text{Cr}_2\text{Te}_3$  and  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  between 0.3 and 4 eV measured at room temperature.



**Fig. 2** Polar Kerr rotation and ellipticity spectra in  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  between 0.7 and 3 eV measured at room temperature.

きる。

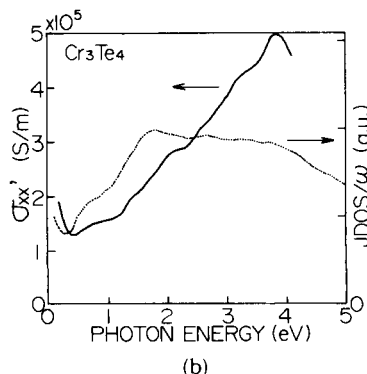
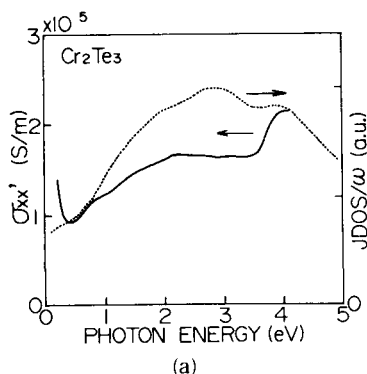
測定結果から導電率テンソルの吸収を表す項  $\sigma'_{xx}$  を求め、既知のバンド計算の結果から算出したものと比較した。バンド構造としては、最近、オランダの Groningen 大学の Dijkstra らが行った ASW 法による計算結果を用いた<sup>5)</sup>。

Fig. 3(a),(b)の実線は反射率スペクトルから Kramers-Kronig の関係式により計算された  $\sigma'_{xx}$  である。バンド計算から  $\sigma'_{xx}$  を評価するには、正しくは、ブリュアン域のすべての  $k$  点につき遷移行列を計算し、 $k$  空間で積分をしなければならないが、近似的には各  $k$  点での遷移行列は一定であるとして  $k$  空間での積分を連結状態密度 (JDOS) でおきかえることができる。我々は、JDOS を、占有されたバンドの状態密度 (DOS) と空いたバンドの DOS との単純なコンボリューションをとることによって評価してみた。Dijkstra の報告には、多数スピン ( $\uparrow$  スピン) と少数スピン ( $\downarrow$  スピン) について、それぞれ

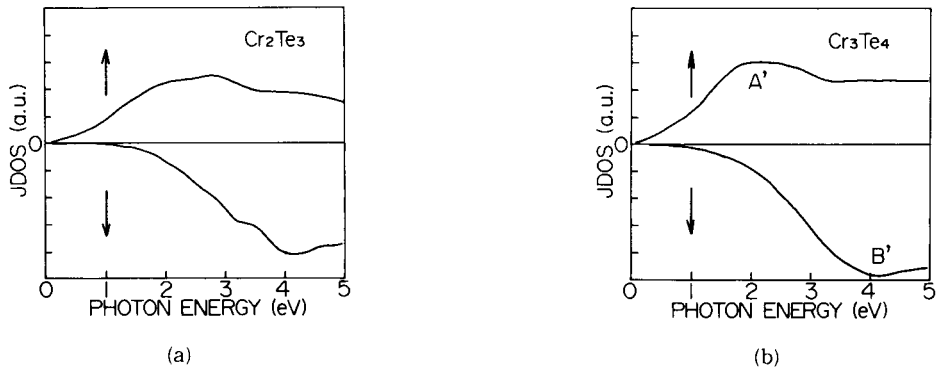
DOS が報告されている。

このようにして評価された JDOS を  $\uparrow, \downarrow$  両スピンのバンドについて Fig. 4(a),(b) に示しておく。  $\uparrow, \downarrow$  両成分を足し合わせ  $\omega$  で割ると  $\sigma'_{xx}$  に対応する項が求められ、Fig. 3(a),(b) の点線がその計算結果である。これを見ると両試料ともにバンド間遷移によるいくつかの吸収の構造がみられ、その位置はバンド計算の結果から求めたものとほぼ一致していることがわかった。スペクトルの形状がいくぶん違っているのは、高エネルギー域のバンド計算結果が報告されていないこと、および、我々の実験において紫外域の反射率スペクトルが欠けているために Kramers-Kronig の関係式による計算が不正確になっていることが原因だと考えられる。

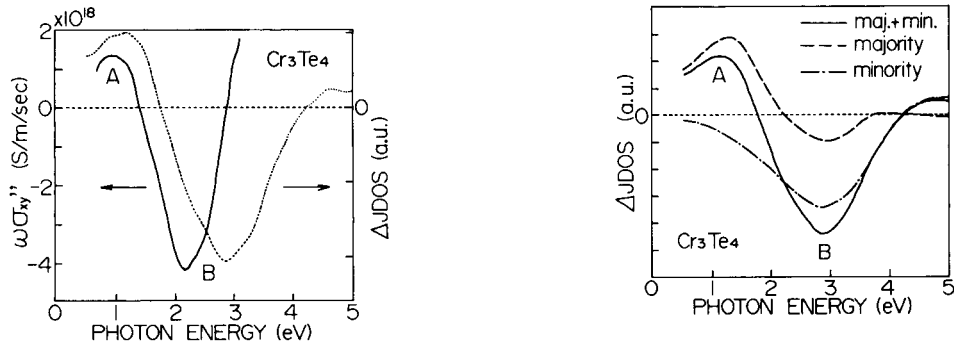
非対角成分については、 $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  についてのみデータが得られているが、測定されたスペクトルから計算した  $\omega\sigma'_{xy}$  を Fig. 5 に実線で示す。  $\omega\sigma'_{xy}$  については、左右円偏光に対する遷移の JDOS の差を考えねばならない。こ



**Fig. 3** Real part of diagonal element of conductivity; the solid curve denotes that obtained by reflectivity spectra and the dotted curve calculated by JDOS (joint density of states).



**Fig. 4** Spectra of JDOS for majority and minority spins, calculated from the reported DOS (density of states) spectra.

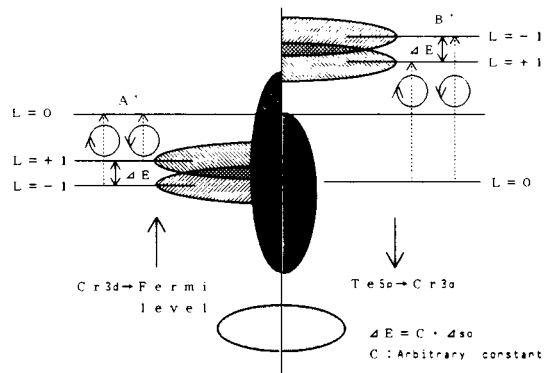


**Fig. 5** Imaginary part of off-diagonal element of conductivity in  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$ ; the solid curve denotes that obtained by the experimental spectrum and the dotted curve calculated by using the JDOS, taking account of spin-orbit interaction.

**Fig. 6** Imaginary part of off-diagonal element of conductivity in  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$ , calculated by using the JDOS with spin-orbit interaction included for majority and minority spins.

これは、スピン軌道相互作用によって生じるものであるが、各スピンバンドにおける JDOS の微分を考えることに相当する。↑スピン側、↓スピン側それぞれの JDOS の微分は Fig. 6 に示されている。(↑スピンと↓スピンとで符号を逆にとったが、それは、d バンドが↑スピンではほぼ  $\epsilon_F$  (フェルミ準位) の下にあるのに対し、↓スピンでは  $\epsilon_F$  の上にあるために、↑スピンでは基底状態のスピン軌道相互作用が効くのに対し、↓スピンでは励起状態のスピン軌道相互作用が働くためである。) 両者の寄与を加え合わせたものが Fig. 6 の実線である。これと Fig. 5 に点線で示してある実験から得られたスペクトルとの対応は、非常に良い。

JDOS の計算に立ち戻って考えると、A, B の吸収の構造は、それぞれ Fig. 4(b) の JDOS の ↑スピンにおける  $A'$  と ↓スピンにおける  $B'$  の吸収に対応している。Fig.



**Fig. 7** Schematic band structure of  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  for majority and minority spins.

7 にバンド構造の模式図を示すが、 $A'$ ,  $B'$  はそれぞれ ↑スピンにおける  $\text{Cr}_{3d} \rightarrow \text{C. B.}$ , ↓スピンにおける  $\text{Te}_{5p} \rightarrow$

$\text{Cr}_{3d}$  の遷移による吸収である。これから、 $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  の 1~3 eV 付近の磁気光学効果の起因が、前述のようなものであると予想される。

## 5. ま と め

気相化学輸送法を用いて  $\text{Cr}_2\text{Te}_3$ ,  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  の単結晶を作製した。両試料について反射スペクトルを測定し、 $\text{Cr}_2\text{Te}_3$ ,  $\text{Cr}_3\text{Te}_4$  とも金属的なスペクトルを持つことがわかった。

$\text{Cr}_3\text{Te}_4$  については磁気光学効果の測定を行い、カー回転角が 293 K, 5 kG のもと 1.3 eV 付近に約 7 分のピーク値を持つことがわかった。また、磁気光学効果に寄与する導電率の非対角成分の吸収に対応する項をバンド計算の結果から予想したものは測定結果から求めたものと良く一致した。このことから、磁気光学効果に寄与しているのが、↑ スピンバンドにおける  $\text{Cr}3d \rightarrow$  フェルミ面、↓ スピンバンドにおける  $\text{Te}5p \rightarrow \text{Cr}3d$  の遷移であることが明らかになった。

この系の物質の磁気光学効果の物理学的起源は、これまで全くわかっていなかったが、本研究において詳細な分光測定と理論的な解析がなされ、電子構造から半定量的に磁気光学効果の起源が説明された。これによりこの系における今後の磁気光学効果の研究の指針が得られたと考えられる。

## 謝 辞

この研究の一部は、文部省科研費特定研究「新しい光磁気材料の開発と物性の研究」の助成を受けた。

## 文 献

- 1) M. Yamaguchi and T. Hashimoto: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **32**, 635 (1972).
- 2) 例えば, R. Atkinson: *Thin Solid Films*, **47**, 177 (1977).
- 3) T. Hashimoto, K. Hoya, M. Yamaguchi and I. Ichitsubo: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **31**, 679 (1971).
- 4) K. Sato: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **20**, 2403 (1981).
- 5) H. Dijkstra: Thesis (Groningen University, 1988).

1988年11月18日受理, 1989年2月10日採録