

Magnetische Widerstandsänderung von Kupfer- und Silber-Einkristallen

W. NEUBERT

Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig

(Z. Naturforsch. 24 a, 922–929 [1969]; eingegangen am 5. März 1969)

Magnetoresistance measurements of Copper and Silver single crystals in weak magnetic fields at 4.2 K are reported. In addition, the magnetoresistance has been calculated. The model used is based on ROAF's analytical representation of the Fermi surface. In view of the simplifying assumptions made about bandstructure and scattering mechanism, the experimental data are found to agree reasonably well with the results of the numerical calculations.

In den letzten Jahren hat sich die Messung des elektrischen Widerstandes von Einkristallen in starken Magnetfeldern als empfindliche Methode zur Bestimmung der Fermi-Fläche erwiesen¹. Je nachdem, ob ein Elektron unter dem Einfluß des Magnetfeldes eine geschlossene oder offene Bahn auf der Fermi-Fläche durchläuft, nimmt der elektrische Widerstand bei hinreichend starkem Magnetfeld einen Sättigungswert an oder nicht. Für diesen Zusammenhang ist nur die Geometrie der Fermi-Fläche von Bedeutung.

Im Grenzfall schwacher Magnetfelder wird die Widerstandsänderung für beliebige kristallographische Orientierungen des Stromes und des Magnetfeldes proportional zum Quadrat der magnetischen Feldstärke. Die Anisotropie ist hier in ihrer allgemeinen Form bereits durch die Symmetrieeigenschaften des Kristallgitters festgelegt² und läßt sich durch verhältnismäßig wenige – bei kubischer Symmetrie sind es drei – voneinander unabhängige Koeffizienten beschreiben. Der Wert dieser Koeffizienten ist durch die Struktur der Energiebänder und des Streumechanismus bestimmt.

Die vorliegende Arbeit^{*} berichtet einerseits über Messungen in schwachen Magnetfeldern bei 4,2 K. Andererseits wird die magnetische Widerstandsänderung unter gewissen Näherungsannahmen, die im nächsten Abschnitt im einzelnen aufgeführt sind, berechnet und mit den experimentellen Ergebnissen verglichen. Für die Rechnung ist es wesentlich, daß die Fermi-Fläche der genannten Metalle ziemlich ge-

nau bekannt ist³. Es wird nicht versucht, den Einfluß des Streumechanismus auf die Anisotropie der Widerstandsänderung^{4, 5} abzuschätzen, weil dafür die über die Bandstruktur gemachten Annahmen als unzureichend angesehen werden.

1. Zur Theorie

Für einen Kristall kubischer Symmetrie läßt sich nach SEITZ⁶ die Stromdichte \mathbf{J} im Grenzfall schwacher Magnetfelder, d. h. unter Beschränkung auf Glieder höchstens 2. Ordnung in der magnetischen Feldstärke \mathbf{H} , folgendermaßen schreiben:

$$\mathbf{J} = \sigma_0 \mathbf{F} + \alpha (\mathbf{F} \times \mathbf{H}) + \beta H^2 \mathbf{F} + \gamma (\mathbf{H} \cdot \mathbf{F}) \mathbf{H} + \delta \mathbf{M} \cdot \mathbf{F}. \quad (1)$$

\mathbf{F} ist die elektrische Feldstärke und \mathbf{M} ein Tensor. Wenn die Koordinatenachsen mit den vierzähligen Achsen des Kristalls übereinstimmen, hat er Diagonalf orm mit den Komponenten H_1^2, H_2^2, H_3^2 .

Die Koeffizienten $\sigma_0, \alpha, \beta, \gamma$ und δ sind Volumenintegrale über die Brillouin-Zone. Die Integranden enthalten die Elektronen-Energie $E(\mathbf{k})$, deren Ableitungen, die Relaxationszeit $\tau(\mathbf{k})$ und die Ableitung $d\phi_0/dE$ der Fermi-Funktion. \mathbf{k} ist der Wellenzahlvektor.

Für die weitere Rechnung wird folgendes Modell festgelegt:

1. Das Elektronengas wird als vollständig entartet betrachtet: Die Ableitung der Fermi-Funktion wird ersetzt durch die Diracsche δ -Funktion, so daß nur

¹ Siehe z. B.: I. M. LIFSHITZ u. V. G. PESCHANSKII, Soviet Phys.-JETP **11**, 137 [1960]. — N. E. ALEKSEEVSKII u. YU. P. GAIUKOV, Soviet Phys.-JETP **15**, 49 [1962]. — I. M. LIFSHITZ u. M. I. KAGANOV, Soviet Phys.-Uspekhi **8**, 805 [1966]. — J. R. KLAUDER, W. A. REED, G. F. BRENNERT u. J. E. KUNZLER, Phys. Rev. **141**, 592 [1966].

² M. KOHLER, Ann. Phys. (5) **20**, 891 [1934].

* Eine kurze Notiz ist in Z. Naturforsch. **22 a**, 1639 [1967] erschienen.

³ D. J. ROAF, Phil. Trans. Roy. Soc. London A **255**, 135 [1962].

⁴ H. BROSS, Festkörperprobleme Bd. 5, S. 73, Friedr. Vieweg u. Sohn, Braunschweig 1966.

⁵ A. SEEGER, E. MANN u. K. CLAUSECKER, Phys. Status Solidi **24**, 721 [1967].

⁶ F. SEITZ, Phys. Rev. **79**, 372 [1950].



noch über die Oberfläche des Fermi-Körpers zu integrieren ist.

2. Es wird angenommen, daß die Streuprozesse sich durch eine Relaxationszeit τ beschreiben lassen und diese nur von der Energie abhängt.

3. Für die Fermi-Fläche wird die von ROAF³ angegebene Gleichung $W(\mathbf{k}) = \text{const}$ benutzt. Die Funktion $W(\mathbf{k})$ wird normiert, so daß sie auf der Fermi-Fläche den Wert 1 annimmt.

4. Außerdem wird die Funktion $W(\mathbf{k})$ in der Umgebung der Fermi-Fläche als brauchbare Näherung für die Bandstruktur angesehen: Dann gilt $E(\mathbf{k}) = \zeta W(\mathbf{k})$, wo ζ der Wert der Fermi-Energie ist.

Statt von ROAF's phänomenologischer Darstellung der Fermi-Fläche könnte man, wenigstens für Kupfer, auch von Bandstruktur-Berechnungen, wie denen von SEGALL⁷ oder BURDICK⁸, ausgehen, jedoch liegen die Ergebnisse nur als Zahlentabellen vor, und es erscheint fraglich, ob bei der Zahl der verfügbaren Werte ausreichende Genauigkeit zu erzielen wäre. Ähnliches gilt auch für die Rechnungen von FAULKNER, DAVIS und JOY⁹.

Mit den Modell-Annahmen 1 bis 4 bekommen die Koeffizienten die Form

$$\begin{aligned}\sigma_0 &= (e^2/4\pi^3\hbar^2)(\tau\zeta)I_\sigma, \\ \alpha &= -(e^3/4\pi^3\hbar^4c_0)(\tau\zeta)^2I_\alpha, \\ \beta &= -(e^4/4\pi^3\hbar^6c_0^2)(\tau\zeta)^3I_\beta, \\ \gamma &= -(e^4/4\pi^3\hbar^6c_0^2)(\tau\zeta)^3I_\gamma, \\ \delta &= -(e^4/4\pi^3\hbar^6c_0^2)(\tau\zeta)^3(I_{\beta+\gamma+\delta}-I_\beta-I_\gamma).\end{aligned}\quad (2)$$

Dabei enthalten die auftretenden Integrale

$$\begin{aligned}I_\sigma &= 16 \sum_n \int \left(\frac{\partial W}{\partial k_n} \right)^2 \frac{ds}{|\nabla W|}, \\ I_\alpha &= 8 \sum_n \int \left(\Omega_{n+1} \frac{\partial W}{\partial k_{n-1}} - \Omega_{n-1} \frac{\partial W}{\partial k_{n+1}} \right) \frac{\partial W}{\partial k_n} \frac{ds}{|\nabla W|}, \\ I_\beta &= 8 \sum_n \int \left[\left(\Omega_{n-1} \frac{\partial W}{\partial k_{n+1}} \right)^2 + \left(\Omega_{n+1} \frac{\partial W}{\partial k_{n-1}} \right)^2 \right] \frac{ds}{|\nabla W|}, \\ I_\gamma &= 16 \sum_n \int \left[\left(\Omega_{n+1} \frac{\partial W}{\partial k_{n+1}} \right) \left(\Omega_{n-1} \frac{\partial W}{\partial k_{n-1}} \right) + \left(\Omega_{n-1} \frac{\partial W}{\partial k_{n+1}} \right) \left(\Omega_{n+1} \frac{\partial W}{\partial k_{n-1}} \right) \right] \frac{ds}{|\nabla W|}, \\ I_{\beta+\gamma+\delta} &= 16 \sum_n \int \left(\Omega_n \frac{\partial W}{\partial k_n} \right)^2 \frac{ds}{|\nabla W|}\end{aligned}\quad (3)$$

noch über die bekannte, normierte Energiefunktion $W(\mathbf{k})$ und den Operator $\Omega = \nabla W \times \nabla$. Die Sum-

mationen sind modulo 3 auszuführen. Bei der Herleitung von (3) ist berücksichtigt, daß man wegen der kubischen Symmetrie nur über 1/48 der Fermi-Fläche zu integrieren braucht und eine zweimalige Anwendung des Operators Ω durch partielle Integration vermeiden kann¹⁰.

Zum Vergleich mit Meßergebnissen ist es zweckmäßig, Gl. (1) zu invertieren, da beim Experiment in der Regel die Stromrichtung fest vorgegeben ist. Unter Beschränkung auf Glieder höchstens 2. Ordnung in der magnetischen Feldstärke \mathbf{H} erhält man eine zu (1) analoge Entwicklung¹¹:

$$\mathbf{F} = \varrho_0 \mathbf{J} + a(\mathbf{J} \times \mathbf{H}) + (1/\varrho_0) [b H^2 \mathbf{J} + c(\mathbf{H} \cdot \mathbf{J}) \mathbf{H} + d \mathbf{M} \cdot \mathbf{J}]. \quad (4)$$

Die Koeffizienten in (1) und (4) sind verknüpft durch die Beziehungen

$$\begin{aligned}\varrho_0 &= \frac{1}{\sigma_0} = \frac{4\pi^3\hbar^2}{e^2\tau\zeta} \frac{1}{I_\sigma}, \\ a &= -\alpha \varrho_0^2 = \frac{4\pi^3}{e c_0} \frac{I_\alpha}{I_\sigma^2}, \\ b &= -(\beta + \alpha^2 \varrho_0) \varrho_0^3 = \left(\frac{4\pi^3}{e c_0} \right)^2 \frac{1}{I_\sigma^3} \left(I_\beta - \frac{I_\alpha^2}{I_\sigma} \right), \\ c &= -(\gamma - \alpha^2 \varrho_0) \varrho_0^3 = \left(\frac{4\pi^3}{e c_0} \right)^2 \frac{1}{I_\sigma^3} \left(I_\gamma + \frac{I_\alpha^2}{I_\sigma} \right), \\ d &= -\delta \varrho_0^3 = \left(\frac{4\pi^3}{e c_0} \right)^2 \frac{1}{I_\sigma^3} (I_{\beta+\gamma+\delta} - I_\beta - I_\gamma).\end{aligned}\quad (5)$$

Die relative Widerstandsänderung wird

$$\frac{\Delta \varrho}{\varrho_0} = \frac{1}{\varrho_0} \left[\frac{(\mathbf{F} \cdot \mathbf{J})}{J^2} - \varrho_0 \right] = \left(\frac{H}{\varrho_0} \right)^2 \cdot \left[b + c(\mathbf{j} \cdot \mathbf{h})^2 + d \sum_{n=1}^3 (j_n h_n)^2 \right]. \quad (6)$$

Mit \mathbf{h} und \mathbf{j} sind Einheitsvektoren in Richtung des Magnetfeldes und des elektrischen Stromes bezeichnet. Mittels (5) können der Hall-Koeffizient a und die Koeffizienten der magnetischen Widerstandsänderung b , c und d berechnet werden, da sie unabhängig von der Relaxationszeit τ und der Fermi-Energie ζ sind. Andererseits sind b , c und d Parameter, die sich unmittelbar aus dem Experiment ergeben. Um von Unterschieden zwischen den einzelnen Proben unabhängig zu sein, werden in dieser Arbeit alle drei Koeffizienten an jeweils demselben Kristall bestimmt. Dafür ist es zweckmäßig, daß der

⁷ B. SEGALL, Phys. Rev. **125**, 109 [1962].

⁸ G. A. BURDICK, Phys. Rev. **129**, 138 [1963].

⁹ J. S. FAULKNER, H. L. DAVIS u. H. W. JOY, Phys. Rev. **161**, 656 [1967].

¹⁰ H. JONES, Handbuch der Physik, Bd. 19, S. 300, Springer-Verlag, Berlin 1956.

¹¹ G. L. PEARSON u. H. SUHL, Phys. Rev. **83**, 768 [1951].

Strom parallel zur [110]-Richtung fließt, weil dann die Anisotropie der Widerstandsänderung im transversalen Magnetfeld am stärksten ausgeprägt ist. Für diesen Fall ist die Widerstandsänderung im longitudinalen Magnetfeld

$$\Delta \rho_L / \rho_0 = (H / \rho_0)^2 (b + c + \frac{1}{2} d), \quad (7)$$

im transversalen Magnetfeld

$$\Delta \rho_T / \rho_0 = (H / \rho_0)^2 (b + \frac{1}{4} d + \frac{1}{4} d \cos(2\varphi)). \quad (8)$$

Der Drehwinkel φ wird in der (110)-Ebene von der [110]-Richtung aus gezählt. Somit lassen sich die Koeffizienten b , c und d aus der longitudinalen Widerstandsänderung, dem Mittelwert der Winkelabhängigkeit im Transversalfeld und der Amplitude gewinnen.

Bisher ist, wie in der Theorie üblich, das Gaußsche cgs-System zugrunde gelegt. Beim Übergang zum MKSA-System ist die magnetische Feldstärke H durch die Induktion B und der Wert c_0 der Lichtgeschwindigkeit durch 1 zu ersetzen.

2. Apparatur und Proben

Der wesentlichste Gesichtspunkt bei der Wahl der experimentellen Methode ergibt sich aus der Forderung, extrem kleine Spannungsunterschiede (von der Größenordnung 10^{-10} V) nachzuweisen. Statt des üblichen Gleichspannungs-Potentiometers wird daher eine von TEMPLETON¹² und von DE VROOMEN und VAN BAARLE¹³ angegebene Anordnung benutzt.

Abb. 1 zeigt den im Helium-Bad befindlichen Meßkreis. Das Nullsignal einer Gleichspannungs-Kompensationsschaltung wird mittels des supraleitenden „Modulators“ in einen Wechselstrom umgewandelt und über den Transformator T1 aus dem Kryostaten herausgeführt.

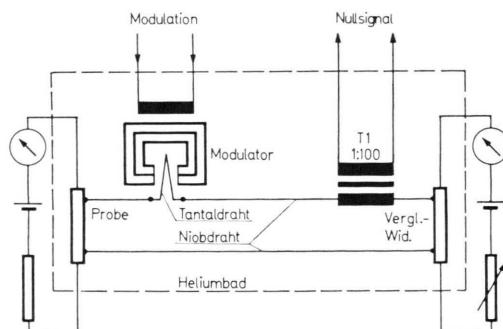


Abb. 1. Kompensationsschaltung

¹² I. M. TEMPLETON, J. Sci. Instr. **32**, 314 [1955].

¹³ A. R. DE VROOMEN u. C. VAN BAARLE, Physica **23**, 785 [1957].

Der Modulator besteht aus einem dünnen Tantaldräht, der mittels eines kleinen Elektromagneten periodisch zwischen normal- und supraleitendem Zustand hin- und hergeschaltet wird. Die Wirkung ist ähnlich wie bei einem mechanischen Zerhacker, jedoch entfallen Kontakt-Schwierigkeiten. Die technische Ausführung des Modulators lehnt sich eng an die Angaben von TEMPLETON¹² an, jedoch bewirkt ein zusätzliches Blei-Blech eine bessere Bündelung des Magnetfeldes. Als Vergleichswiderstand dient ein etwa 30 mm langer, getempelter Kupferdraht von 0,2 mm Durchmesser, dessen Widerstand bei 4,2 K wiederholt zu $1,665 \cdot 10^{-4} \Omega$ bestimmt wurde. Die Verbindungsleitungen innerhalb des Heliumbades sind aus supraleitendem Material (Niobdraht) hergestellt. Dadurch wird der Gesamtwiderstand des Meßkreises klein gehalten und infolgedessen gute Anpassung und niedriger Rauschpegel erreicht.

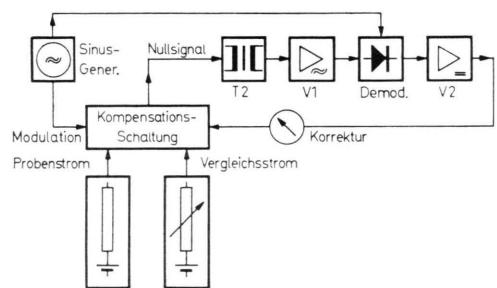


Abb. 2. Blockschaltbild der Meßanordnung.

Abb. 2 zeigt das Blockschaltbild der Meßanordnung. Das aus dem Kryostaten kommende Nullsignal gelangt über einen weiteren Transformator T2 mit dem Übersetzungsverhältnis 1 : 30 zu einem rauscharmen selektiven Verstärker V1. Durch das Herausführen eines Wechselstrom-Signals sind langsam veränderliche Thermospannungen als Störquelle ausgeschaltet. Der Transformator T2 ist nötig, um das extreme Verhältnis zwischen der Impedanz der Kompensationsschaltung von ca. $1 \text{ m}\Omega$ und der Eingangsimpedanz des Verstärkers von ca. $50 \text{ k}\Omega$ zu überbrücken. Nach der selektiven Verstärkung wird das Signal in einem phasenempfindlichen Demodulator¹⁴ gleichgerichtet und dem Gleichspannungsverstärker V2, dessen Frequenzgang zwecks Unterdrückung von Störspannungen stark beschränkt ist, zugeleitet. Der Ausgangsstrom wird schließlich über ein Drehspulinstrument zum Vergleichswiderstand der Kompensationsschaltung zurückgeführt und zu dem von der Batterie gelieferten Strom addiert. Auf diese Weise ist ein geschlossener Regelkreis entstanden, der den bisher notwendigen manuellen Nullabgleich durch eine automatische Kompensation ersetzt. Der Ausschlag des Drehspulinstrumentes ist direkt proportional zur Widerstandsänderung der Probe, wenn Proben- und Vergleichsstrom konstant gehalten werden. Die Gesamt-

¹⁴ E. A. FAULKNER, J. Sci. Instr. **36**, 321 [1959].

verstärkung bei offenem Regelkreis beträgt etwa 200. Damit entsteht bei der Kompensation ein Fehler von etwa 0,5%. Es erwies sich als zweckmäßig, mit einer Frequenz von etwa 500 Hz zu arbeiten.

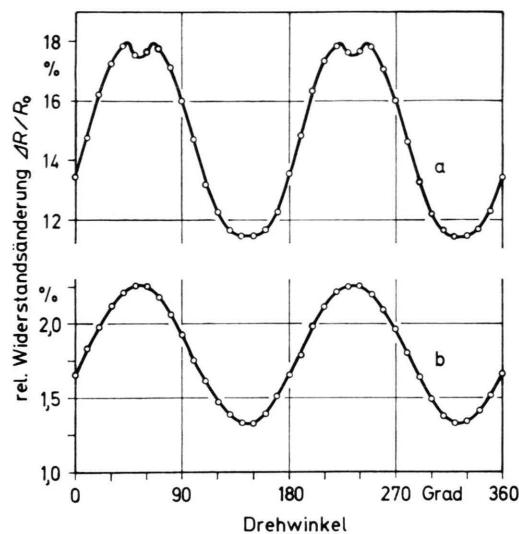
Das Transversalfeld wird mittels eines kleinen Magneten mit Eisenkern, dessen Polschuh (100 mm Durchmesser) zur Homogenisierung des Feldes mit Korrektur-Ringen versehen sind, erzeugt. Zur Herstellung des Longitudinalfeldes dient eine eisenfreie Anordnung von 3 Spulen¹⁵, die mit flüssigem Stickstoff gekühlt werden. Die Magnetfelder waren in beiden Fällen innerhalb des Bereiches zwischen den Potentialsonden auf 1% homogen.

Als Proben dienten 4 Einkristallstäbe mit kreisförmigem Querschnitt (Bezugsquelle: Metals Research, Ltd., Cambridge, England). Ihre Längsachse sollte jeweils höchstens 2° von der [110]-Richtung abweichen, was durch Röntgen-Aufnahmen nach der Drehkristallmethode bestätigt worden ist. Als maximalen Gehalt an metallischen Verunreinigungen geben die Hersteller 5 ppm für Kupfer, 1 ppm für Silber an. Wegen dieses relativ hohen Reinheitsgrades sind sehr niedrige Restwiderstände und somit große freie Weglängen der Leitungselektronen bei tiefen Temperaturen vermutet worden. Um Geometrieffekte zu vermeiden und die Handhabung zu erleichtern, sind die Dimensionen der Kristalle verhältnismäßig groß gewählt: Länge etwa 70 mm, Durchmesser etwa 5 mm. Wie sich später herausstellte, betrug das Restwiderstandsverhältnis $R_{4,2}/R_{293}$ anfangs nur etwa 1 : 100 bis 1 : 150. Durch Temperiern bei 600 °C bis 800 °C im Hochvakuum (besser als 10⁻⁷ Torr) konnte es etwa verdoppelt werden.

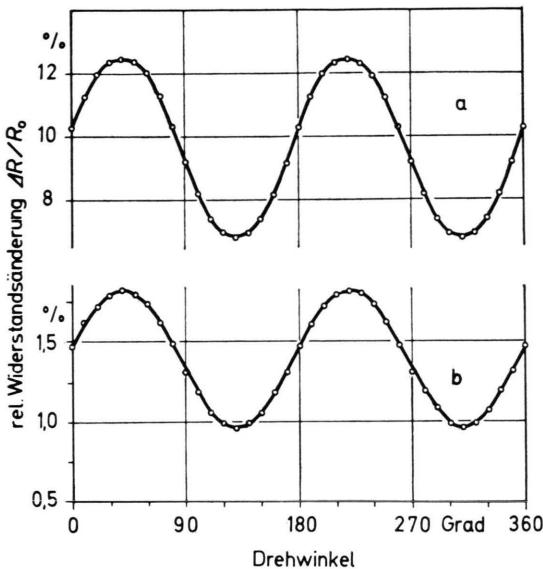
3. Experimentelle Ergebnisse

Abbildung 3 zeigt Beispiele für die Winkelabhängigkeit der im transversalen Magnetfeld gemessenen relativen Widerstandsänderungen $\Delta R/R_0$. R_0 ist der Restwiderstand ohne Magnetfeld. Die eingetragenen Punkte repräsentieren den Mittelwert jeweils zweier Messungen mit entgegengesetzter Richtung des Magnetfeldes. Dadurch werden Fehler durch Hall-Spannungen vermieden. Umkehren der Stromrichtung hatte innerhalb der Meßgenauigkeit keinen Einfluß auf die Ergebnisse.

Zumindest bei den niedrigsten Feldstärken zeigen die gemessenen Kurven das von der Theorie, Gl. (8), geforderte Verhalten: Die Widerstandsänderung hängt linear vom Kosinus des doppelten Drehwinkels ab. Bei den höheren Feldstärken hingegen treten, vor allem bei der Probe Ag2, deutliche Abweichungen auf. Hier ist die Bedingung „schwacher“ Magnetfelder nicht mehr streng erfüllt. Die Vermutung liegt nahe, daß sich in den Verzerrungen die



3 A: Probe Ag2, gemessen bei $B=0,28$ Vs/m² (a) und bei $B=0,08$ Vs/m² (b).



3 B: Probe Cu2, gemessen bei $B=0,3$ Vs/m² (a) und bei $B=0,1$ Vs/m² (b).

Abb. 3. Winkelabhängigkeit der relativen Widerstandsänderung im transversalen Magnetfeld bei Drehung um die [110]-Richtung (Längsrichtung des Kristalls). Der Nullpunkt des Drehwinkels ist willkürlich; für die Kurven a und b gelten verschiedene Maßstäbe.

im Grenzfall starker Magnetfelder beobachtete Struktur andeutet. Vergleicht man ein von ALEKSEEVSKII und GAIUDUKOV¹ an einem Silberkristall gleicher Orientierung gemessenes Drehdiagramm mit der Ag2-Kurve (Abb. 3 A), so findet man an der Stelle,

¹⁵ J. R. BARKER, J. Sci. Instr. 27, 197 [1950].

	B Vs/m ²	$a_0/2$ %	c_2 %	c_1/c_2	c_3/c_2	c_4/c_2	c_5/c_2	c_6/c_2	c_7/c_2	c_8/c_2
Cu 1	0.1	1.10	0.35	0.011	0.021	0.012	0.013	0.008	0.002	0.010
	0.2	3.87	1.21	0.005	0.001	0.027	0.003	0.003	0.010	0.003
	0.3	7.72	2.35	0.003	0.003	0.035	0.005	0.021	0.004	0.006
Cu 2	0.1	1.40	0.43	0.004	0.002	0.011	0.004	0.006	0.006	0.007
	0.2	4.88	1.50	0.043	0.045	0.038	0.044	0.034	0.048	0.046
	0.3	9.69	2.93	0.005	0.005	0.020	0.006	0.031	0.001	0.001
Ag 1	0.1	1.08	0.25	0.021	0.016	0.008	0.012	0.006	0.014	0.009
	0.2	3.83	0.85	0.010	0.010	0.016	0.002	0.014	0.002	0.002
	0.3	7.55	1.69	0.006	0.006	0.024	0.002	0.044	0.009	0.012
Ag 2	0.08	1.79	0.47	0.020	0.009	0.014	0.013	0.004	0.007	0.003
	0.28	14.7	3.45	0.009	0.005	0.026	0.002	0.086	0.006	0.018

Tab. 1. Fourier-Analyse der Drehdiagramme.

wo in unserer Kurve die Einsattelung im Maximum ist, ein tiefes Minimum, das von den ausgeprägtesten Maxima dieses Drehdiagramms flankiert wird.

Um die Abweichungen vom geforderten Verhalten zahlenmäßig zu erfassen, wird der Oberwellenanteil durch Fourier-Analyse bestimmt. Die Reihenentwicklung lautet:

$$\frac{\Delta R}{R_0} = a_0/2 + \sum_{v=1}^n [a_v \cos(v\varphi) + b_v \sin(v\varphi)]. \quad (9)$$

Damit ist $c_v = \sqrt{a_v^2 + b_v^2}$ die resultierende Amplitude der v -ten Harmonischen.

In Tab. 1 sind für alle untersuchten Proben der Mittelwert $a_0/2$, die Amplitude c_2 und die Amplitudenverhältnisse c_v/c_2 bis zur 8. Ordnung zusammengestellt.

Bei den niedrigsten Feldstärken sind die Amplituden-Verhältnisse alle ungefähr gleich groß, was offensichtlich durch die statistische Streuung der Meßwerte bedingt ist. Bei stärkeren Magnetfeldern hingegen ragen die geradzahligen Harmonischen deutlich heraus und nehmen – bei Ag2, $B = 0,28$ Vs/m² $\cong 2800$ Gauß – Werte bis zu 9% an.

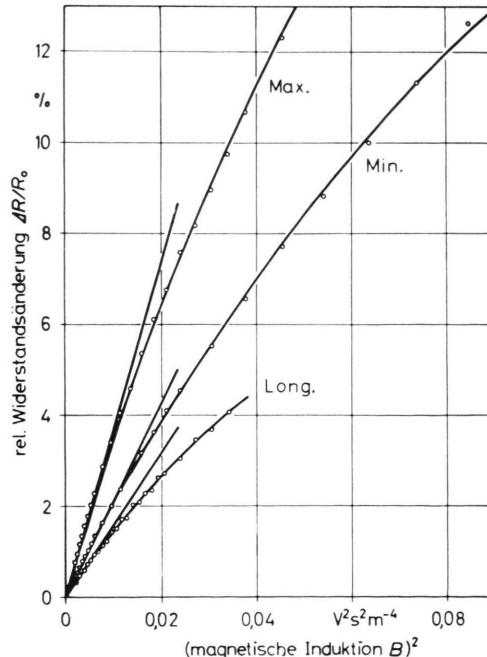
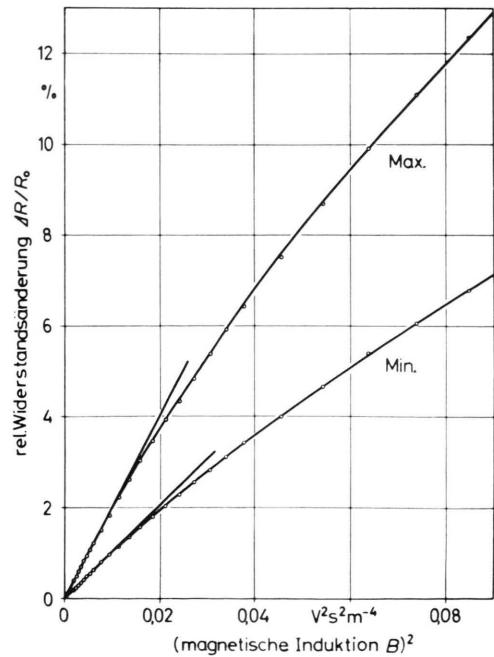


Abb. 4. Relative Widerstandsänderung als Funktion von B^2 , gemessen im Longitudinalfeld (Long.) und im Transversalfeld (Max. und Min.) für zwei spezielle Drehwinkel, die einem Maximum und einem Minimum in Abb. 3 (Kurven b) entspre-



chen. Die eingezzeichneten Kurven geben die Ausgleichsfunktion $\Delta R/R_0 = A \cdot B^2 / (1 + C \cdot B^2)$ [siehe Gl. (11) und Tab. 2] wieder. Die Tangenten stellen den Grenzfall $\Delta R/R_0 = A \cdot B^2$ dar.

4 A (links) : Probe Ag2. 4 B (rechts) : Probe Cu2.

	Cu 1			Cu 2			Max	Ag 1			Ag 2		
	Max	Min	Long	Max	Min	Long		Min	Long	Max	Min	Long	
<i>A</i>	1,57	0,80	0,74	2,00	1,02	0,89	1,40	0,91	0,53	3,69	2,11	1,59	$m^4 V^{-2} s^{-2}$
$\Delta A/A$	1,9	1,7	6,7	1,4	1,6	4,7	2,0	2,7	7,6	3,2	3,9	4,5	$\text{--} 10^{-2} m^4 V^{-2} s^{-2}$
<i>C</i>	4,2	3,4	3,3	4,5	3,3	4,1	3,3	3,1	4,0	7,8	5,2	10,8	$\text{--} 10^{-2} m^4 V^{-2} s^{-2}$

Tab. 2. Ergebnisse der Ausgleichsrechnung.

Abb. 4 zeigt die Abhängigkeit der relativen Widerstandsänderung $\Delta R/R_0$ vom Quadrat der magnetischen Induktion B . Die von der Theorie geforderte quadratische Abhängigkeit, Gl. (6), wird durch eine Nullpunkts-Gerade dargestellt. Offensichtlich treten bei stärkeren Feldern auch hier Abweichungen auf, wiederum am stärksten bei der Probe Ag2. In Abb. 4 A endet die Longitudinalfeld-Kurve etwa bei $B = 0,18 \text{ Vs/m}^2$, der oberen Grenze der Leistungsfähigkeit der Magnetspulen, während sie in Abb. 4 B nicht eingezeichnet ist, weil sie von der Min.-Kurve kaum zu trennen wäre.

Um auf den Grenzfall schwacher Felder zu extrapolieren, ist eine Ausgleichsrechnung nach der Methode der kleinsten Quadrate zweckmäßig. Der in Anlehnung an das Zwei-Bänder-Modell¹⁶ gebildete Ansatz

$$\Delta R/R_0 = A \cdot B^2 / (1 + C \cdot B^2) \quad (11)$$

liefert bereits mit nur zwei anzupassenden Konstanten befriedigende Übereinstimmung mit den Meßpunkten. Tabelle 2 enthält die berechneten Parameter A und C sowie den prozentualen mittleren Fehler $\Delta A/A$ des Parameters A .

4. Ergebnisse der Modellrechnung und Diskussion

Die Resultate der Modellrechnung sind in Tab. 3 zusammengestellt. Die Hall-Konstante a und die Koeffizienten der Widerstandsänderung b, c und d sind

	Cu IV	Cu VI	Ag IV	Ag VI	
$-a$	4,51	5,51	8,17	7,65	$\cdot 10^{-11} \text{ m}^3/\text{As}$
b	0,72	1,14	1,07	1,57	
$-c$	0,73	1,17	1,00	1,05	$\cdot 10^{-20} (\text{m}^3/\text{As})^2$
d	1,27	1,52	1,47	1,44	

Tab. 3. Berechnete Koeffizienten.

¹⁶ E. H. SONDHEIMER u. A. H. WILSON, Proc. Phys. Soc. London A **190**, 435 [1947].

¹⁷ M. KOHLER, Ann. Phys. (5) **32**, 211 [1938].

¹⁸ D. SHOENBERG, Phil. Trans. Roy. Soc. London A **255**, 85 [1962].

nach (3) und (5) numerisch berechnet worden. Sie sollten wegen ihrer Unabhängigkeit von der Stoßzeit (KOHLERSche Regel¹⁷) echte Materialkonstanten sein.

Die Bezeichnungen der hier benutzten Fermi-Flächen sind im wesentlichen von ROAF³ übernommen: Die römische Zahl hinter dem chemischen Symbol gibt an, wie viele von Null verschiedene Entwicklungskoeffizienten die Funktion $W(\mathbf{k})$ jeweils enthält. Zur analytischen Beschreibung der aus SHOENBERGS¹⁸ Messungen des De Haas-Van Alphen-Effektes resultierenden Gestalt der Fermi-Flächen hat ROAF zunächst Fourier-Reihen mit 4 Gliedern angesetzt. Nachdem aber bei einem Vergleich mit Messungen des anomalen Skin-Effektes von PIPPARD¹⁹ an Kupfer und von MORTON²⁰ an Silber Diskrepanzen aufgetreten waren, nahm er weitere Glieder hinzu (Cu VI und Ag VI) und erreichte damit für beide Methoden befriedigende Übereinstimmung. Wie man sieht, unterscheiden sich, gleiches Material vorausgesetzt, in der Tab. 2 bei den einzelnen Reihenentwicklungen die Hall-Koeffizienten etwa um den Faktor 1,2, die Koeffizienten der magnetischen Widerstandsänderung höchstens etwa um den Faktor 1,5.

Um etwas über die Genauigkeit der Rechnung aussagen zu können, ist es notwendig, einige Einzelheiten des Programms anzuführen:

Zunächst wird das Integrationsgebiet, dessen Grenzen bei ROAF⁶ angegeben sind, in kleine Teilflächen ds zerlegt. Für alle Wellenvektoren \mathbf{k} , die jeweils in der Mitte eines solchen Teilbereichs enden, werden unter Verwendung der analytischen Formeln für die Ableitungen der Funktion $W(\mathbf{k})$ die Integranden ausgerechnet, mit dem zugehörigen ds multipliziert und aufsummiert. Die \mathbf{k} -Vektoren sind zuvor, da die Fermi-Fläche nur implizit gegeben ist, durch schrittweise Eingabelung bestimmt worden. Als maximaler Fehler in $|\mathbf{k}|$ ist 1/25 000 des für freie

¹⁹ A. B. PIPPARD, Phil. Trans. Roy. Soc. London A **250**, 325 [1957].

²⁰ V. M. MORTON, Ph. D. Thesis, Cambridge University 1960.

Elektronen gültigen Kugelradius zugelassen. Zur Kontrolle wird noch das Volumen des Fermi-Körpers berechnet, das bei Annahme eines Leitungselektrons pro Atom genau halb so groß wie das der Brillouin-Zone sein sollte. Die größte Abweichung von etwa 1% tritt bei Cu IV auf und ist erheblich größer als bei ROAF⁶, was vermutlich auf Unterschiede im numerischen Verfahren zurückzuführen ist. Im Laufe der Rechnung wird das Integrationsgebiet immer feiner unterteilt, indem die Zahl der Flächenstücke ds jeweils vervierfacht wird bis sie schließlich etwas mehr als 600 beträgt. Dabei ändert sich der Wert des Integrals $I_{\beta+\gamma+\delta}$ am stärksten, am Schluß zwischen 0,8% und 1,7%. Die letzten Volumenänderungen liegen unter 1%.

Tabelle 4 enthält die aus den experimentellen Daten ermittelten Koeffizienten b , c und d . Ihre Berechnung ergibt sich aus den Gln. (7) und (8). Von den Meßergebnissen wurden die Parameter a_0 , c_2 [aus der Winkelabhängigkeit im Transversalfeld, Gln. (9) und (10), Tab. 2] und A_{Long} [aus der Feldabhängigkeit im Longitudinalfeld, Gl. (11), Tab. 3] verwendet. Dabei sind nur die bei der jeweils niedrigsten Induktion ($B \leq 0,1 \text{ Vs/m}^2$) aufgenommenen Drehdiagramme berücksichtigt. Der Wert des spezifischen Widerstandes ρ_0 ohne Magnetfeld ist aus dem gemessenen Restwiderstandsverhältnis $R_{293}/R_{4,2}$ (Tab. 4, Zeile 2) und dem spezifischen Widerstand ρ_{293} bei Zimmertemperatur²¹ errechnet.

Zusätzlich sind in Tab. 4 Ergebnisse von OLSON und RODRIGUEZ²² (Cu OR und Ag OR), gemessen bei 4,2 K, und von BROSS und BRAUN²³ (Cu BB), gemessen bei 77,3 K, angeführt.

Vergleicht man zunächst unsere Resultate untereinander, so findet man gute Übereinstimmung (bis auf 10%) bei den Proben Cu1 und Cu2, weniger

gute bei Ag1 und Ag2. Die Literaturwerte sind durchweg größer als die hier angeführten, bei Kupfer um den Faktor 1,1–1,7, bei Silber um den Faktor 3–4. In den zitierten Arbeiten werden Unsicherheiten zwischen 5% und 23% genannt. Die eigenen Resultate weisen mittlere Fehler zwischen 4% und 12% auf.

Der Vollständigkeit halber enthält Tab. 4 noch die Hall-Koeffizienten a . Da diese in der vorliegenden Arbeit nicht experimentell bestimmt wurden, sind Ergebnisse von FUKUOI und IKEDA²⁴ (Cu FI und Ag FI) angegeben. Diese Autoren haben polykristallines Material untersucht. Wegen der Isotropie des Hall-Koeffizienten sollten die Resultate auch für Einkristalle gelten.

Bei einem Vergleich der experimentellen mit den theoretischen Koeffizienten findet man: Die berechneten Hall-Koeffizienten stehen in relativ gutem Einklang mit den bei Zimmertemperatur gemessenen, hingegen sind die bei 4,2 K gefundenen Werte etwa 20% bis 30% größer. Bei der Widerstandsänderung kommen für Kupfer die aus Roafs Cu IV-Fermi-Fläche berechneten Werte den experimentellen Ergebnissen am nächsten, insbesondere den Cu OR- und den Cu BB-Werten; allerdings treten erhebliche Abweichungen bei dem Koeffizienten d auf. Die Cu1- bzw. Cu2-Daten liegen systematisch etwa 30% bzw. 40% niedriger als die entsprechenden theoretischen Werte. Bei Silber liegen die theoretischen Werte zwischen unseren und denen von OLSON und RODRIGUEZ²².

Wie oben erwähnt, sollten alle Koeffizienten entsprechend der Kohlerschen Regel, unabhängig von Probe und Temperatur, echte Materialkonstanten sein. Dies ist nicht der Fall. Daraus kann man schließen, daß der Ansatz einer nur von der Energie ab-

	Cu 1	Cu 2	CuOR	CuBB	CuFI	Ag 1	Ag 2	AgOR	AgFI	
ρ_{293}			1,68					1,60		$\cdot 10^{-8} \Omega \text{ m}$
$R_{293}/R_{4,2}$	208	250	20–70	80	29	204	281	20–70	19	
B	0,1	0,1	$\leq 0,9$	2,0–2,7	2	0,1	0,08	$\leq 0,9$	2	Vs/m^2
$-a$			bei 4,2 K:		6,0				10,3	$\cdot 10^{-11} \text{ m}^3/\text{As}$
			bei 293 K:		4,9				8,4	
b	0,52	0,46	0,70	0,69		0,55	0,71	2,2		
$-c$	0,51	0,48	0,80	0,84		0,54	0,70	2,2		$\cdot 10^{-20} (\text{m}^3/\text{As})^2$
d	0,95	0,83	1,06	1,41		0,64	1,01	4,4		

Tab. 4. Experimentell bestimmte Koeffizienten und allgemeine Daten.

²¹ LANDOLT-BÖRNSTEIN, Zahlenwerte und Funktionen, 2. Bd., 6. Teil, Springer-Verlag, Berlin 1959.

²² R. OLSON u. S. RODRIGUEZ, Phys. Rev. **108**, 1212 [1957].

²³ H. BROSS u. E. BRAUN, Z. Metallkde. **56**, 446 [1965].

²⁴ T. FUKUOI u. T. IKEDA, Sci. Rep. Res. Inst. Tohoku Univ. Ser. A **8**, 205 [1956].

	berechnet				experimentell bestimmt						
	Cu IV	Cu VI	Ag IV	Ag VI	Cu 1	Cu 2	CuÖR	CuBB	Ag 1	Ag 2	AgOR
- c/b	1,01	1,02	0,94	0,67	0,98	1,03	1,14	1,22	0,99	0,98	1,0
d/b	1,77	1,33	1,38	0,92	1,84	1,79	1,51	2,02	1,17	1,41	2,0

Tab. 5. Verhältnisse der Koeffizienten.

hängigen Relaxationszeit $\tau(E)$ nicht streng zulässig ist. Insbesondere läßt sich mit diesem Ansatz eine Temperaturabhängigkeit der Hall-Koeffizienten a , wie sie experimentell festgestellt worden ist^{24, 25}, nicht erklären. Man könnte nun versuchen, aus den Messungen der magnetischen Widerstandsänderung Informationen über die Anisotropie des Streumechanismus^{4, 5} zu gewinnen. Um zuverlässige Ergebnisse zu erzielen, müßte man jedoch die Bandstruktur genauer berücksichtigen, als es mit der etwas willkürlichen Annahme 4 in Abschnitt 1 geschehen ist.

Eine weitere Ursache für Abweichungen von der Kohlerschen Regel kann die inhomogene Verteilung der Streuzentren innerhalb der Probe sein. Nimmt man an, daß der spezifische Widerstand ϱ_0 vom Ort abhängt und die Kohlersche Regel lokal gültig ist, so läßt sich zeigen, daß man statt der „richtigen“ Koeffizienten b , c und d die Werte $p \cdot b$, $p \cdot c$ und $p \cdot d$ aus den Messungen erhält, wobei $p = \langle \frac{1}{\varrho_0} \rangle / \langle \frac{1}{\varrho_0} \rangle^3$ ist, wenn ϱ_0 in axialer Richtung und $p = \langle \frac{1}{\varrho_0^3} \rangle / \langle \frac{1}{\varrho_0} \rangle^3$ ist, wenn ϱ_0 in radialer Richtung variiert. Da in beiden Fällen $p \geq 1$ ist, stellt man experimentell eine größere Widerstandsänderung fest als bei Anwendung der Kohlerschen Regel auf den Kristall als Ganzes zu erwarten wäre. Einen experimentellen Hinweis hierfür lieferte ein zusätzlicher Kupfer-Kristall, der im Gegensatz zu den anderen in einer sauerstoffhaltigen Atmosphäre getempert wurde. Die beobachtete magnetische Widerstandsänderung war fast zehnmal größer als erwartet.

Um die Anisotropie vollständig zu beschreiben, genügen zwei Zahlen, z. B. die Verhältnisse c/b und

²⁵ K. H. RAETZ, Dissertation, Universität Gießen 1968.

d/b , die in Tab. 5 zusammengestellt sind. Wie man der Tabelle entnimmt, stimmen die experimentellen Cu1- und Cu2-Werte mit den theoretischen Cu IV-Werten innerhalb der Meßgenauigkeit überein. Bei Silber kommen die theoretischen Ag IV-Daten den experimentellen am nächsten. Die Unterschiede bei den d/b -Werten der Proben Ag1 und Ag2 sind wohl darauf zurückzuführen, daß hier die Bedingung schwächerer Magnetfelder nicht in dem Maße erfüllt ist wie bei den beiden Kupfer-Kristallen. Man erkennt dies an den stärkeren Abweichungen vom quadratischen Verlauf bei der Feldabhängigkeit (Abb. 4) und dem höheren Oberwellengehalt der Drehdiagramme (Abb. 3, Tab. 1).

Es ist bemerkenswert, daß sich in beiden Fällen, bei Kupfer und bei Silber, die beste Annäherung an die experimentellen Daten aus den mit IV bezeichneten Fermi-Flächen, die Roaf nur aus Shoenbergs Meßergebnissen berechnet hat, ergibt.

Zusammenfassend folgt aus dem Vergleich der experimentellen Resultate mit den berechneten, daß die Anisotropie der magnetischen Widerstandsänderung von dem Modell erstaunlich gut erfaßt wird, obwohl der Ansatz einer isotropen und räumlich konstanten Relaxationszeit nur näherungsweise zulässig ist und die Bandstruktur und damit die Geschwindigkeitsverteilung der Elektronen an der Fermi-Kante und die 2. Ableitung der Energie nicht mit der wünschenswerten Genauigkeit berücksichtigt sind.

Mein Dank gilt Herrn Prof. Dr. M. KOHLER für die Anregung zu dieser Arbeit und für seine Ratschläge in theoretischen Fragen. Herrn Dr. W. RÜHL danke ich für die freundliche Unterstützung und für manchen wertvollen Hinweis. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft hat die Arbeit durch Sachbeihilfen gefördert.