

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 19 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420686

研究課題名(和文)遷移金属合金および磁性多層膜の磁気緩和定数の第一原理計算

研究課題名(英文)First principles calculation for the magnetic damping constants of transition metal alloys and magnetic multilayers

研究代表者

佐久間 昭正 (Sakuma, Akimasa)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30361124

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、磁化の運動方程式におけるギルバート緩和の微視的理解と、第一原理計算による遷移金属合金のギルバート緩和定数の定量評価を行った。その結果、これまで異なる形で表されていたに関する表式が結果として同じ結果を与えること、また、その中でもトルク相関法に基づく記述が(パーテックス補正項を無視できるなど)数値計算を行う上でより簡便に適切な結果を与えることが明らかとなった。更に、この検討結果を受けて、トルク相関法を用いてホイスラー合金のの第一原理計算を行い、の値がフェルミ準位の電子状態密度を強く反映することを示した。

研究成果の概要(英文)：We have theoretically studied the microscopic feature of the Gilbert damping in magnetization dynamics, and performed the first principles calculation for the Gilbert damping constant, for transition metal alloys. We found that the two different descriptions for by torque correlation (TC) method and spin correlation (SC) method in turn provide the same result and furthermore the TC method is more suitable for actual calculations for , because it avoids some problems in numerical processes. Based on this consideration, using the first principles technique under the TC method, we have calculated for some Heusler alloys and clarified that the value of is strongly affected by the density of states at the Fermi level.

研究分野：磁性物理

キーワード：ギルバート緩和 スピン動力学 第一原理計算 遷移金属 ホイスラー合金

1. 研究開始当初の背景

磁気ヘッドや磁気記録媒体、MRAM (Magnetic Random Access Memory) そして磁気センサといった近年の高周波磁気デバイスに要求される動作時間は $10^{-8} \sim 10^{-9}$ 秒の領域に達しており、(微小)強磁性体における磁化の動力学的微視的理解(把握)と制御技術の確立は磁気工学の大きな課題となっている。例えばMRAMの開発においては、磁界による磁化反転に換えて電流誘起磁化反転が注目され、その臨界電流密度(J_c)の低減が重要課題となっている。Slonczewski¹⁾によれば、 J_c は下式のLandau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式におけるギルバート緩和定数に比例するとされている。

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{M} = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha \frac{\mathbf{M}}{M} \times \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{M} \quad (1)$$

古くから、磁化の動的挙動は上のLLG方程式を用いて記述され、(1)式右辺第二項がスピン緩和項、 α をギルバート緩和定数と呼んでいる。一般にスピンの緩和定数は磁化の反転時間(T_1 と呼ばれる)に深く関わり、さらに量子コンピュータにおいてはスピンオ差運動の位相緩和時間(T_2 と呼ばれる)にも関係していることから、その制御と起源についての関心が急速に高まってきている。また、磁性膜に非磁性金属層を接合することでギルバート緩和定数が増大するという実験結果が報告され²⁾、スピン流が直接磁気緩和にかかわる現象として注目されるようになった。これは現在、スピンポンピングによる磁気緩和とよばれており、スピンエレクトロニクス分野において重要な役割を果たしている。

スピン緩和の微視的な起源についての理論研究は半世紀以上前から行われてきたが、2007年、Kambersky³⁾やGilmore等⁴⁾(以下K-Gと略記)は、スピン軌道相互作用を考慮した電子状態の第一原理計算からギルバート緩和定数を定量的に見積もる手法を提案した。この理論は、広い意味でこれまでの理論の描像を包含しているが、(不純物等による)電子の散乱効果をDrude型、即ち $1/\tau$ (τ は電子の寿命)というパラメータを用いて考慮しているため、この意味では半定量的評価となっている。

その後、Ebert等⁵⁾やStarikov等⁶⁾は、

Brataas等⁷⁾によって提案されたScattering理論を基にギルバート緩和定数を線形応答理論を用いて表し、電子状態に対する第一原理計算から遷移金属合金の定量的評価を行っている。線形応答理論を用いることでグリーン関数を用いて表すことができ、不規則配置による電子の散乱効果、即ち電子の寿命をコヒーレントポテンシャル近似(CPA)によって自然に取り込むことが可能となる。

これに対し、2012年に我々はK-G理論による強結合-線形マフィンティン軌道(TB-LMTO)法とCPAの下で記述し、Fe-NiやFe-Pt系の不規則合金の第一原理計算によって評価した⁸⁾。これにより、組成比や規則度および構成元素のスピン軌道相互作用強度がにどのような影響を与えるかを初めて具体的に示すことができた。しかしながら、の第一原理計算には依然として以下に示すような課題があり、今後のスピントロニクスの発展にとって解決が急務と考える。

1) K-G理論によるの表式と、上述のScattering理論などに基づく表式がどのような関係にあるかを含めたギルバート緩和に関する統一的記述。2) スピンポンピング機構によるギルバート緩和定数の第一原理計算手法の確立。3) (ギルバート緩和と同様にスピン軌道相互作用に起因する)結晶磁気異方性や異常ホール伝導がギルバート緩和がどのような関係にあるかについての、第一原理計算の立場からの解明。

参考文献

- 1) J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Mater. **159** (1996), L1.
- 2) S. Mizukami, Y. Ando, and T. Miyazaki, Phys. Rev. B **66**, (2002), 104413.
- 3) V. Kambersky, Phys. Rev. B **76** (2007) 134416.
- 4) K. Gilmore, Y. U. Idzerda and M. D. Stiles, Phys. Rev. Lett. **99** (2007), 027204.
- 5) H. Ebert, et al., Phys. Rev. Lett. **107** (2011), 066603.
- 6) A. A. Starikov, et al., Phys. Rev. Lett. **105** (2010), 236601.
- 7) A. Brataas, Y. Tserkovnyak, and G. E. Bauer, Phys. Rev. Lett. **101** (2008), 037207.
- 8) A. Sakuma, J. Phys. Soc. Jpn., **81** (2012), 084701.

2. 研究の目的

本研究は、磁化の動力学を記述する Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式において、磁気緩和を表すギルバート緩和に関する理論研究であり、目的は以下の3点である。

1. ギルバート緩和定数の統一的理解と第一原理による計算手法の再構築
2. 第一原理計算による遷移金属合金や磁性多層膜のギルバート緩和定数の定量評価
3. ギルバート緩和定数と結晶磁気異方性定数、および異常ホール伝導度の関係についての(物質の個別性を含めた)定量レベルでの検討

3. 研究の方法

これまでいくつかのグループから提案された第一原理によるギルバート緩和定数の計算手法の関係を明らかにし、更に、多層膜のような不均一系やスピン波など磁化の非一様運動における磁気緩和まで含めて統一の立場からギルバート緩和定数の定量的評価が実行できる手法を提案する。次に、スピン波(非一様磁化運動)や多層膜(不均一)系におけるギルバート緩和定数の定量評価を行う。また、ギルバート緩和定数と磁気異方性定数 K_u および異常ホール伝導度 α_{xy} の関係を定量レベルで示していく。

4. 研究成果

我々は Kambarsky や Gilmore 等によるトルク相関法を基に、ギルバート緩和定数の第一原理計算プログラムを作成し、スピントロニクス物質の定量評価を行ってきた。一方、Ebert 等や Starikov 等はスピン相関関数法を基にの定量評価を行っている。従って、トルク相関法とスピン相関法が理論的かつ定量的にどのような関係にあるかを明らかにしておく必要がある。そこで、我々はこれまで提案された理論の相互関係を定量レベルで明らかにすることで、ギルバート緩和に関する統一の記述を目指すことを目指した。

図1に bcc - $Fe_{50}Co_{50}$ 不規則合金のギルバート緩和定数の計算結果を示す¹⁾。ここでは Fe と Co の不規則配列による電子散乱の影響を考慮するため、コヒーレントポテンシャル近似(CPA)を用いた。(E)はフェルミ準位 E を実際の位置 ($E=0$) から仮想的に移動させた時のギルバート緩和定数の変化を表しており、 $E=0$ における値が実際の α に対応する。

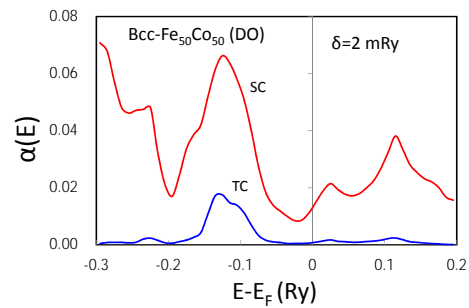


図1 SC法とTC法による $FeCo$ 不規則合金のギルバート緩和定数 α のフェルミエネルギー (E) 依存性

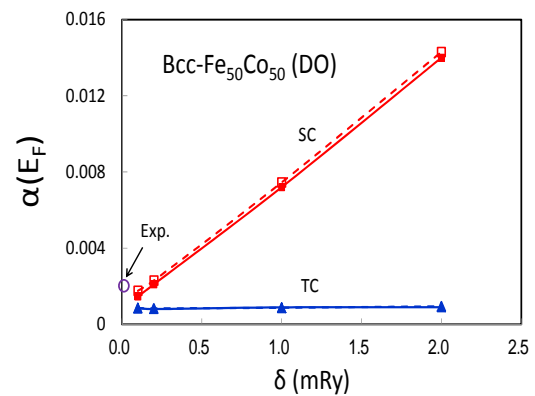


図2 SC法とTC法による $FeCo$ 不規則合金のギルバート緩和定数 α の δ 依存性

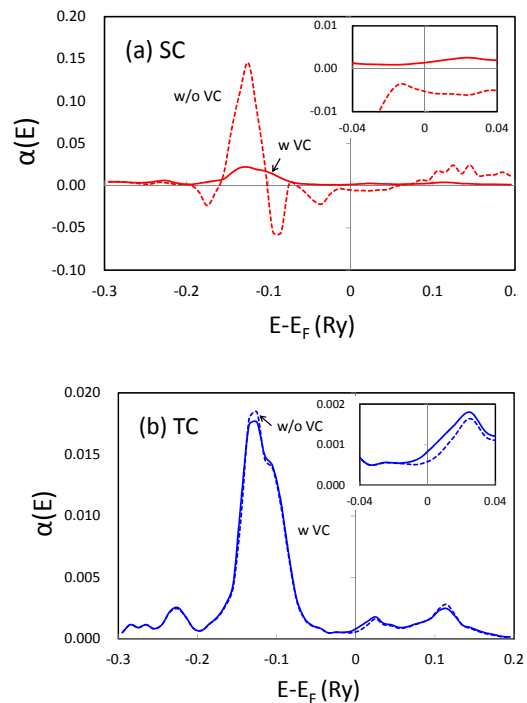


図3 SC法(a)とTC法(b)による $FeCo$ 不規則合金の $\alpha(E)$ 。実線は VC 項を考慮した結果、破線は VC 項を無視したものの

スピン相関 (SC) 法による結果とトルク相関 (TC) 法の結果は (E に対して) 類似の挙動を示しているが、SC 法による値は TC 法のそれを大きく上回っていることが分かる。ここで、図中に示した α は遅延グリーン関数において因果律を反映するように導入された正の微小量であり、理論的には 0 の極限を採る必要がある。そこで、 $E=0$ における実際の α の値を $\alpha(E)$ の関数としてプロットしたところ、**図 2** のような結果が得られた。明らかに、TC 法は $\alpha(E)$ に対して安定であるのに対し、SC 法による $\alpha(E)$ は $E < 0$ の減少とともに単調に低下し、

$E=0$ で両者が一致するように見える。このことから、TC 法と SC 法は原理的には同じ結果を与えること、および (数値計算上、 α は有限にする必要があるため) TC 法による評価の方が妥当な結果を与えることが判明した。次に、不規則配列による電子散乱効果を適切に反映するバーテックス補正 (VC) 項の影響を見るため、両方法で VC 項の有無による違いを調べた。**図 3 (a), (b)** にそれぞれ SC 法と TC 法による結果を示す。SC 法では VC 項を無視すると、物理的に不自然な $\alpha(E) < 0$ の領域が生じるなど、VC 項の影響が無視できないことがわかる。一方、TC 法では VC 項の影響は殆どないことが理解される。

以上のことから、TC 法と SC 法は理論的には同一の結果を与えるが、実際の $\alpha(E)$ の定量評

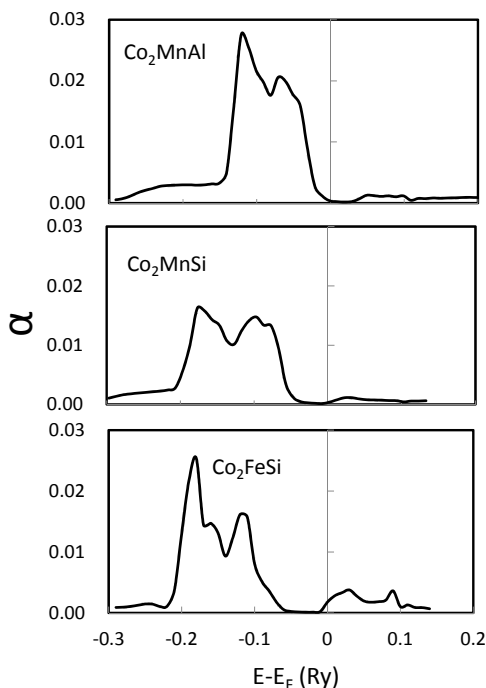


図 4 (a) L₂₁ 構造の CMA, CMS および CFS の $\alpha(E)$

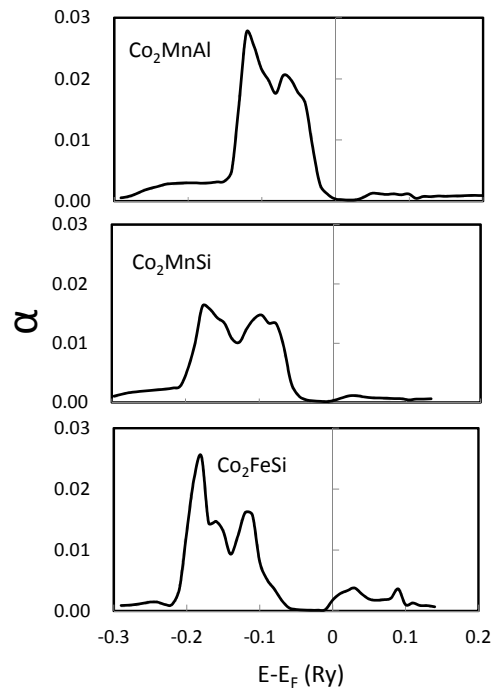


図 4 (b) B₂ 構造の CMA, CMS および CFS の $\alpha(E)$

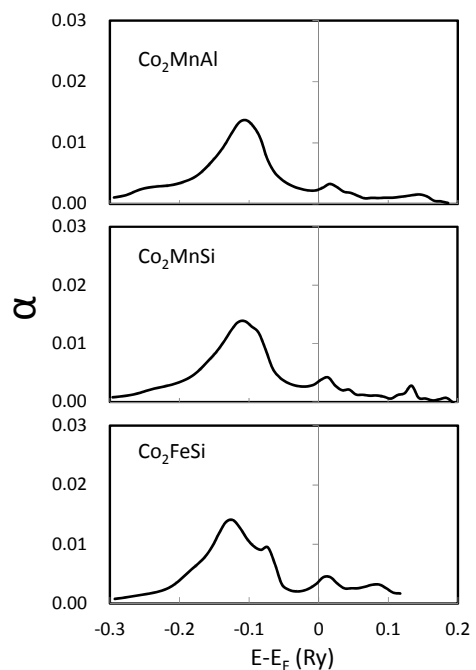


図 4 (c) A₂ 構造の CMA, CMS および CFS の $\alpha(E)$

価 (数値計算) においては TC 法がより適切な結果を与えることが明らかとなった。

以上の検討結果を踏まえ、TC 法を用いてホイスラー合金である Co_2MnAl (CMA)、 Co_2MnSi (CMS) および Co_2FeSi (CFS) のギルバート緩和定数の第一原理計算を行った²⁾。これら

ホイスラー合金はハーフメタルと考えられており、スピントロニクス材料として期待が大きい。これらは原子配列の規則性に応じて L_2 構造 (完全規則構造) B_2 構造 (部分規則構造) そして A_2 構造 (完全不規則構造) があり、がこの3つの構造でどのように変化するかを CPA を用いて評価した。図 4 (a), (b), (c) に CMA, CMS, CFS の3構造における (E) の計算結果を示す。 L_2 構造の場合 (図 4 (a)) は、完全規則構造を反映していずれの系でもフェルミ準位 ($E=0$) における (E) はほぼ 0 に近い値を示す。実際、文献に示したように、 (E) のスペクトルはそれぞれの状態密度 (DOS) に類似した形状となっている。また、これらの系は B_2 構造においてもハーフメタルを維持しているため、 B_2 構造における (E) も $E=0$ 近傍で殆ど 0 に近い値を持つことが分かる。しかし、 A_2 構造ではフェルミ準位 ($E=0$) に有限の DOS が生じることを反映して、 (E) は $E=0$ で比較的大きな値を有する結果となる。

多くの場合 (E) は下向きスピン状態の DOS と上向きスピン状態の DOS の積で近似されるので、何れかのスピンバンドにギャップがあると、そのエネルギー領域での (E) はほぼ 0 となる。上の結果は、上記の描像を反映したものであり、このことから (E) のフェルミエネルギー依存性はほぼ DOS に比例して変化することが示された。

参考文献

- 1) Akimasa Sakuma, J. Appl. Phys. **117**, (2015) 013912.
- 2) Akimasa Sakuma, J. Phys.D, **48**, (2015) 164011.

5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 11 件)

S. Mizukami, A. Sakuma, A. Sugihara, K. Z. Suzuki, R. Ranjbar, Mn-based hard magnets with small saturation magnetization and low spin relaxation for spintronics, Scripta Materialia, 査読有, **118**, 2016, p70-74.

DOI: 10.1016/j.scriptamat.2016.01.045.

Nobuyuki Umetsu, Daisuke Miura, and Akimasa Sakuma,

Spin-wave-induced spin torque in Rashba ferromagnets, Physical Review

査読有, B **91**, 2015, p174440-1 - 174440-6,

DOI: 10.1103/PhysRevB.91.174440.

Akimasa Sakuma, First-principles study of the Gilbert damping constants of Heusler alloys based on the torque correlation model, Journal of Physics D, 査読有, **48**, p.164011-1 - 164011-7, 2015, DOI: 10.1088/0022-3727/16/164011.

Nobuyuki Umetsu, Daisuke Miura and Akimasa Sakuma, Gilbert damping of ferromagnetic metals incorporating inhomogeneous spin dynamics, Journal of Applied Physics, 査読有, **117**, p.17E122-1 - 17E122-4, 2015, DOI: 10.1063/1.4916499.

Akimasa Sakuma, Theoretical investigation on the relationship between the torque correlation and spin correlation models for the Gilbert damping constant, J. Appl. Phys. 査読有, **117**, p. 013912-1 - 013912-6, 2015, DOI: 10.1063/1.4905429.

S. Isogami, M. Tsunoda, M. Oogane, A. Sakuma, and M. Takahashi, Dependence of Magnetic Damping on Temperature and Crystal Orientation in Epitaxial Fe₄N Thin Films, J. Magn. Soc. Jpn. 査読有, **38**, p. 162-168, 2014.

Akimasa Sakuma, Microscopic Theory of Gilbert Damping for Transition metal Systems, Journal of the Magnetic Society of Japan, 査読有, **37**, p.343 - 351, 2013, Kazushige Hyodo, Yohei Kota, and Akimasa Sakuma, First-principles study on the relationship between magnetic anisotropy and anomalous Hall effect of bct-Fe₅₀Co₅₀, Journal of Applied Physics, 査読有, **115**, p. 17C710-1 - 17C710-3, 2013,

DOI: 10.1063/1.4862218.

S. Mizukami, A. Sakuma, T. Kubota, Y. Kondo, A. Sugihara and T. Miyazaki, Fast magnetization precession for perpendicularly magnetized MnAlGe epitaxial films with atomic layered structures, Applied Physics Letters, 査読有, **103**, p. 142405-1 - 142405-4, 2013, DOI: 10.1063/1.4824031.

Shinji Isogami, Masakiyo Tsunoda, Mikihiko Oogane, Akimasa Sakuma, and Migaku Takahashi, The Enhancement of Magnetic Damping in Fe₄N Films with Increasing Thickness, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, **52**, p.073001-1 - 073001-3, 2013, DOI: 10.7567/JJAP.52.073001.

Shinji Isogami, Masakiyo Tsunoda, Mikihiko Oogane, Akimasa Sakuma, and Migaku Takahashi, Enhancement of Spin

Pumping Efficiency in Fe4N/Pt Bilayer Films, Applied Physics Express, 査読有, **6**, p. 063004-1 - 063004-4, 2013, DOI: 10.7567/APEX.6.063004.

〔学会発表〕(計 1 1 件)

兵頭一茂, 小田洋平, 佐久間昭正, FePt, FePd 不規則合金における異常ホール伝導度の第一原理計算, 日本物理学会 71 回年次大会, 2016 年 3 月 22 日, 東北学院大(仙台市).

熊本達也, 三浦大介, 佐久間昭正, フェリ磁性体におけるスピン流の記述, 日本物理学会 71 回年次大会, 2016 年 3 月 19 日, 東北学院大(仙台市).

兵頭一茂, 小田洋平, 佐久間昭正, 第一原理計算を用いた FePt, FePd 合金の異常ホール伝導度の規則度依存性, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 2015 年 9 月 10 日, 名古屋大(名古屋市).

K. Hyodo and A. Sakuma, Anomalous Hall effect originated from the different electron lifetime about magnetic quantum number in disordered Fe50Co50, 20th International Conference on Magnetism, 2015 年 7 月 9 日, Barcelona, Spain.

兵頭一茂, 佐久間昭正, 磁気量子数によって異なる電子寿命に起因する異常ホール伝導度, 日本物理学会 70 回年次大会, 2015 年 3 月 21 日, 早稲田大(東京).

N. Umetsu, D. Miura, and A. Sakuma, Gilbert damping of ferromagnetic metals in inhomogeneous spin dynamics, 59th ANNUAL CONFERENCE ON MAGNETISM AND MAGNETIC MATERIALS, 2014 年 11 月 6 日, Honolulu, USA.

梅津信之, 三浦大介, 佐久間昭正, ランジュバ型スピン軌道相互作用を伴う強磁性金属の不均一スピンダイナミクスにおけるスピン緩和, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月 7 日, 中部大学(名古屋市).
兵頭一茂, 小田洋平, 佐久間昭正, 第一原理計算を用いた bct-FeCo 合金における内因性異常ホール効果の規則度依存性, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月 7 日, 中部大学(名古屋市).

K. Hyodo, Y. Kota, and A. Sakuma, First-principles study on the relationship between magnetic anisotropy and anomalous Hall effect of bct-Fe50Co50, 58th Annual MMM conference, 2013 年 11 月 7 日, Denver, USA.

兵頭一茂, 小田洋平, 佐久間昭正, bct-Fe50Co50 合金における磁気異方性と異常ホール効果の相関に関する理論研究, 第 37 回日本磁気学会学術講演会, 2013 年 9 月 5 日, 北大(札幌市).

N. Umetsu, D. Miura, and A. Sakuma,

Spin damping due to impurity scattering of electrons, The 3rd International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications (ISAMMA 2013), 2013 年 7 月 22 日, Taichung, Taiwan.

〔図書〕(計 1 件)

佐久間昭正, 丸善、「磁気便覧」(1.7 磁気伝導現象の基礎), 2016, 904 頁(p50-p79).

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐久間 昭正 (SAKUMA, Akimasa)
東北大学大学院・工学研究科・教授
研究者番号: 30361124

(2) 研究分担者

三浦 大介 (MIURA Daisuke)
東北大学大学院・工学研究科・助教
研究者番号: 90708455

(3) 連携研究者

なし