

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月6日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06702

研究課題名(和文)不均一磁化運動におけるギルバート緩和定数の微視的理論の構築と第一原理計算

研究課題名(英文) Microscopic study on the Gilbert damping constant for the inhomogeneous spin dynamics

研究代表者

佐久間 昭正 (SAKUMA, Akimasa)

東北大学・工学研究科・教授

研究者番号：30361124

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、主に磁性多層膜などの磁気的不均一系や磁性体内に非一様な磁化運動(スピンゆらぎ)がある場合のギルバート緩和定数に関する理論的検討である。その結果、積層界面におけるスピンの振る舞いを示すことがわかった。このことから、多層膜系におけるスピンポンピング効果は、多層膜全体を一つの系(バルク)とみなした従来のトルク相関法で適切な形で反映されると考えられる。また、スピン揺らぎ(磁気構造の乱れ)は電子の散乱によるバンド間遷移を助長するので、は増大する方向に働くことが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁気デバイスの高速度動作と低消費電力には磁化回転に際してのスピン緩和時間が大きく関わっている。一般にスピンの緩和定数は磁化の反転時間に深く関わり、さらに量子コンピュータにおいてはスピント差運動の位相緩和時間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。本研究は(微小)強磁性体におけるスピン緩和の起源とその支配因子に関する理論研究であり、近年の磁気工学の課題解決に寄与し得るテーマである。

研究成果の概要(英文)：We have theoretically studied the Gilbert damping in the magnetic systems having magnetic inhomogeneity such as multilayered structures and spin fluctuations. It is found, for the multilayer system, that the model calculation taking into account the spin currents at the interface give substantially the same results with those by the first principles calculation taking the whole electronic structure of multilayer system into account. This indicates that the spin pumping effects in the multilayered systems can be appropriately reflected in the torque correlation model proposed first by Kambersky. As for the cases with spin fluctuation, it promotes the inter-band transitions due to the electron scattering, resulting in the increase of Gilbert damping constant.

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

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

Magnetic Random Access Memory (MRAM) などのスピントロニクス関連の磁気デバイスに要求される主な特性は高速動作 ( $10^{-8} \sim 10^{-9}$  秒)、低消費電力そして大容量である。1996 年に Slonczewski<sup>1)</sup> によって提案された電流誘起磁化反転機構は、低消費電力化の有効な手法として注目され、MRAM への応用に向けた研究が精力的に行われている。その後、電流誘起磁化反転は、MRAM のみならずスピントルク発振器やスピントルクダイオード、そしてスピン波伝播素子など幅広い研究テーマに発展している。

これら、磁気デバイスの高速動作と低消費電力には磁化回転に際しての緩和時間が大きく関わっている。例えば、電流誘起磁化反転に必要とされる臨界電流密度は、Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式におけるギルバート緩和定数に比例し、磁化運動の緩和時間と密接な関係にある。このように、(微小)強磁性体における磁化の動力学とその緩和機構の理解は近年の磁気工学の大きな課題となっている。

古くから、磁化の動的挙動は以下の LLG 方程式を用いて記述され、磁気デバイスの有力な設計ツールとして重用されてきた。

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

ここで、(1)式右辺第二項がスピン緩和項、 $\alpha$  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に深く関わり、さらに量子コンピュータにおいてはスピノ差運動の位相緩和時間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  $\alpha$  が増大するという実験結果が報告され<sup>2)</sup>、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、スピンプンピングによる磁気緩和とよばれており、スピン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、Kambersky<sup>3)</sup> や Gilmore 等<sup>4)</sup> (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  $\alpha$  を定量的に見積もる手法 (トルク相関法) 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  $1/\tau$  ( $\tau$  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<sup>5)</sup> や Starikov 等<sup>6)</sup> は、Brataas 等<sup>7)</sup> によって提案された Scattering 理論を基に  $\alpha$  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  $\alpha$  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  $\alpha$  を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 年に我々はトルク相関法 (K-G 理論) による  $\alpha$  を強結合 - 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 系およびハーフメタルと呼ばれるホイスラー合金の  $\alpha$  を第一原理計算によって評価した<sup>8,9)</sup>。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  $\alpha$  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。その後、我々はトルク相関法 (K-G 理論) による  $\alpha$  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検討し、理論的かつ定量的に両者が同一の結果を与えるものであることを示した<sup>10)</sup>。また、モデル計算の範囲ではあるが、磁化の非一様運動が磁気緩和に与える影響を明らかにすることができた<sup>11)</sup>。

しかしながら、 $\alpha$  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)いくつかの物質の  $\alpha$  の計算値が測定値の 1/10 程度の値に留まるなど、系によって理論計算に含まれていない大きな効果が存在するように思われる。(2)上記(1)の問題に関連して、磁化の非一様運動や非断熱効果が  $\alpha$  にどのような影響を与えるか、そして(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(内因性)異常ホール伝導がギルバート緩和とどのような関係にあるか、等が依然明らかになっていない。ちなみに、(3)の磁気異方性定数と異常ホール伝導度については、既に第一原理計算から定量評価する手法を確立しており、いくつかの系に対して定量評価

を行っている<sup>12)</sup>。

研究開始時点でギルバート緩和の理論研究に定量レベルで取り組んでいるのは国内では本代表者のみと認識しているが、上記の問題は、磁化の動力学と伝導現象がからむスピントロニクス of 諸現象の解明と磁気デバイスの開発において今後ますます重要度を増す不可欠の課題になってくると考える。

#### 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.
- 9) A. Sakuma, J. Phys. D, **48**, (2015), 164011.
- 10) A. Sakuma, J. Appl. Phys. **117**, (2015), 013912-1.
- 11) N. Umetsu, D. Miura, A. Sakuma, Phys. Rev. B **91**, (2015), 174440-1.
- 12) K. Hyodo, Y. Kota, and A. Sakuma, J. Appl. Phys., **115**, (2014), 17C710-1.

## 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定数の起源とその定量評価に関する理論研究であり、目的は以下の3点である。

- (1) 磁気多層膜などの磁氣的不均一系や磁性体内に非一様な磁化運動 (スピン波など) がある場合のギルバート緩和定数の第一原理計算
- (2) 磁化の運動による非断熱効果を考慮したギルバート緩和定数の理論研究
- (3) ギルバート緩和定数と結晶磁気異方性定数、および (内因性) 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

本研究では、これまでの磁気緩和理論を磁化の不均一性や動的観点から再検討し、微視的立場からの統一的理解と計算手法の再構築を目指す。そのため、最初に多層膜構造や磁化の非一様運動の影響を取り込んだ の微視的記述とそれに基づく第一原理計算を試みる。多層膜構造の に関しては、現行の技術で対応可能であり、特に非磁性層との接合系は応用上重要である。非一様磁化運動に関しては、我々がこれまで構築してきた non-collinear 磁気構造や spiral 磁気構造の電子状態の第一原理計算手法を の計算に取り込み、静的極限としてのスピン波の第一原理計算プログラムを作成する予定である。次に、これを用いて Fe-Co 系などいくつかのスピントロニクス材料の の  $q$  (スピン波の波数) 依存性の計算を行い、磁化の非一様運動が に与える影響を定性・定量的両面から明らかにしていく予定である。

また、バルクのギルバート緩和は主に SOI に起因して生じるが、SOI は同時に結晶磁気異方性や (内因性) 異常ホール伝導ももたらす。そこで、 と  $K_u$ 、そして  $\sigma_{xy}$  の関係を個々の物質について詳細に調査していく予定である。具体的には、ブリルアンゾーン内のどのバンドがそれぞれに最も寄与しているか、物質による違いが何か、などを明らかにしていく。このような検討によって、スピントロニクスにとって最も重要なこれら特性の本質的理解と制御指針の提供を目指す。

## 4. 研究成果

図 1 に強磁性 (FM) / 非磁性 (NM) 層の積層構造における の第一原理計算の結果を示す<sup>1)</sup>。ここでは Co および Fe の FM 層と Pt, Pd, Cu などスピン軌道相互作用 (SOI) が異なる NM 層との接合系についての評価を行った。その結果、(1) NM 層の膜厚増大とともに  $\alpha$  が増大する、(2) Pt, Pd, Cu の順に NM 層との接合による  $\alpha$  の増大が大きい、(3) FM 層が薄いほど NM 層の接合による変化が大きい、ことが確認された。更に、我々は FM 層と NM 層の界面に配列の乱れがある場合、 にどのような影響が現れるかについて第一原理計算を行った。結果は図 2 に示されるように、系に僅かの乱れが入ることで ( $x=0$  近傍) は急激に減少し、更に乱れの度合い ( $x$ ) が増すと徐々に が増大する傾向を示すことが分かった。これは文献 3,4) で示されたように、電子の散乱確率が弱い場合には は緩和時間 に比例し、散乱が強くなるにつれ

て  $1/\alpha$  に比例して増大する振る舞いと軌を一にしている。ただし、NM=Cu の場合 (図 2 左) の挙動は NM 層数 ( $t_{\text{NM}}$ ) に殆ど依存しないのに対し、NM=Pd の場合 (図 2 右) は NM 層数の増大とともに  $\alpha$  が増大する傾向がみられる。これは図 1 にも示されたように、SOI が大きい NM 層は層数とともに磁気緩和に大きく影響することを反映したものと解釈される。

また、非一様磁化運動に関しては有限温度を想定し、スピンのランダム配置を仮定して ( $M$ ,  $M$  は磁化) の第一原理計算を行った。

図 3 に Fe と Ni の  $\lambda$  の温度依存性の計算結果と実験結果を示す<sup>2)</sup>。ここでの温度依存性は、スピンの規則度を変化させ磁化の変化からそれを温度に換算して評価した。計算結果は Fe, Ni いずれにおいても大きな温度依存性を示さなかった。Fe の場合、これは実験結果と類似の挙動に見えるが、Ni の場合は定性的にも定量的にも実験結果と大きく異なっている。図 2 でも議論したように、低温に向かって電子の緩和時間  $\lambda$  は増大するので ( $\alpha$ ) は増大すると考えられ、Ni の挙動はそれを反映したものとして解釈することができる。図 4 はいくつかの L1<sub>0</sub> 型規則合金の  $\lambda$  の第一原理計算結果である。FePd と MnAl では大きな温度依存性は認められないが、CoPt と FePt では低温に向かって  $\lambda$  が増大する傾向が認められる。一般に磁気緩和が  $1/\alpha$  に比例する傾向は、SOI の存在によるバンド内遷移に起因した効果である。このことから、Ni や Pt 系合金で低温に向かって  $\lambda$  が増大する傾向がみられるのは SOI によるバンド内遷移過程が顕著になるためと理解される。

最後に、ギルバート緩和定数 ( $\alpha$ ) と結晶磁気異方性定数 ( $K$ ) および異常ホール伝導度 ( $\sigma_{xy}$ ) の関係についての検討として、Rashba 系強磁性体をモデルに、異常ホール伝導度 ( $\sigma_{xy}$ )、磁気異方性定数 ( $K$ ) およびギルバート緩和定数 ( $\alpha$ ) の温度依存性に関する理論研究を行った<sup>3)</sup>。その結果、Rashba 系の  $\alpha$  は図 4 と同様の温度依存性を示すが、 $\sigma_{xy}$  は一般の 3d 遷移金属強磁性体と著しく異なる温度依存性を示すことが明らかになった。

#### 参考文献

- 1) R. Hiramatsu, D. Miura, and A. Sakuma, *AIP Advances*, **8**, 056016-1 (2017).
- 2) Dai Ozaki, Daisuke Miura, Akimasa Sakuma, *IEEE TRANSACTION ON MAGNETICS*, **55**, pp.1300604-1 (2017).
- 3) Akimasa Sakuma, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, pp. 034705-1 (2018).

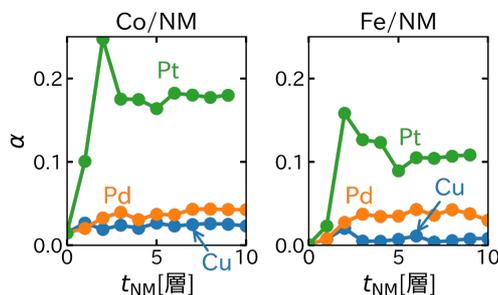


図 1 FM/NM 接合系における  $\alpha$  の NM 層数 ( $t_{\text{NM}}$ ) 依存性 . 左 : FM=Co、右 : FM=Fe

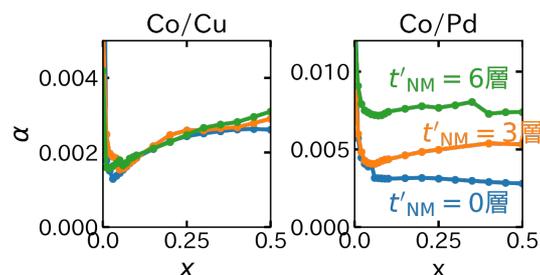


図 2 Co/Cu (左) および Co/Pd (右) の積層構造において、界面に原子配列の乱れがある場合の  $\alpha$  の第一原理計算 . 横軸の  $x$  は界面における乱れの度合いを表すパラメータであり、 $x=0$  は乱れ無し、 $x=0.5$  は界面の組成比が 1:1

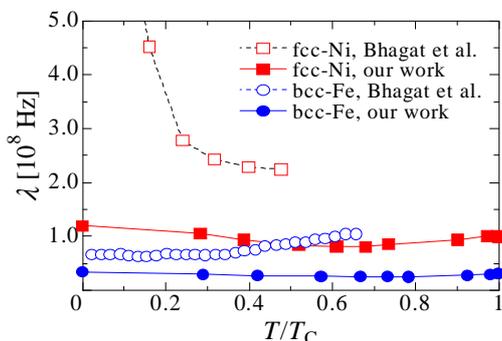


図 3 Fe と Ni の  $\lambda$  の温度依存性の計算結果

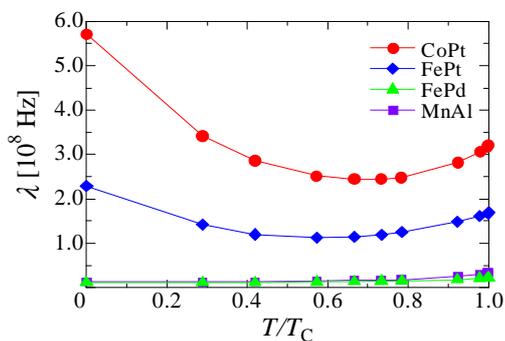


図 4 L1<sub>0</sub> 型規則合金の  $\lambda$  の温度依存性

## 5 . 主な発表論文等

### [ 雑誌論文 ] ( 計 7 件 )

- Dai Ozaki, Daisuke Miura, Akimasa Sakuma, Theoretical Study of Gilbert Damping Constants in Magnetic Multilayer Films, IEEE TRANSACTION ON MAGNETICS, 2019, 査読有, (in press).
- Fumiya Saito, Daisuke Miura, and Akimasa Sakuma, Theoretical Study of Gilbert Damping in Rare-Earth Permanent Magnets, IEEE TRANSACTION ON MAGNETICS, 2019, 査読有, (in press).
- Akimasa Sakuma, Temperature Dependence of Anomalous Hall Conductivity in Rashba-type Ferromagnets, J. Phys. Soc. Jpn. 87, pp. 034705-1 - 034705-7, 2018. 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.87.034705
- Dai Ozaki, Daisuke Miura, Akimasa Sakuma, First-Principles Study on the Magnetic Damping of Transition Metals in the Presence of Spin Fluctuation, IEEE TRANSACTION ON MAGNETICS, 55, pp.1300604-1 - 1300604-4, 2017. 査読有, DOI: 10.1109/TMAG.2017.2696057
- R. Hiramatsu, D. Miura, and A. Sakuma, First principles calculation for Gilbert damping constants in ferromagnetic/non-magnetic junctions, AIP Advances, 8, pp. 056016-1 - 056016-6, 2017. 査読有, DOI: 10.1063/1.5007255
- Y. Yahagi, D. Miura, and A. Sakuma, Theoretical study on the perpendicular anisotropic magnetoresistance using Rashba-type ferromagnetic model, AIP Advances, 8, pp. 055822-1 - 055822-5, 2017. 査読有, DOI: 10.1063/1.5007179
- S atoshi Iihama, Akimasa Sakuma, Hiroshi Naganuma, Mikihiro Oogane, Shigemi Mizukami, and Yasuo Ando, Influence of L10 order parameter on Gilbert damping constants for FePd thin films investigated by means of time-resolved magneto-optical Kerr effect, Physical Review B 94, pp. 174425-1 - 174425-11, 2016. 査読有, DOI:10.1103/PhysRevB.94.174425

### [ 学会発表 ] ( 計 5 件 )

- 2019 Joint MMM-Intermag Conference, “Theoretical Study of Gilbert Damping in Magnetic Multilayer Film”, D. Ozaki, Poster, 2019 年 .
- 2019 Joint MMM-Intermag Conference, “Theoretical Study of Gilbert Damping in Rare-Earth Permanent”, F. Saito, Poster, 2019 年 .
- 2017 Intermag Conference, “First-Principles Study on the Magnetic Damping of Transition Metals in the Presence of Spin Fluctuation”, D. Ozaki, Poster, 2017.
- 62nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (2017 MMM), “First principles calculations for Gilbert damping constants in ferromagnetic/non-magnetic junctions”, R. Hiramatsu, Poster, 2017.
- 62nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (2017 MMM), “Theoretical study on the perpendicular anisotropic magnetoresistance using Rashba-type ferromagnetic model”, Y. Yahagi, Poster, 2017.

## 6 . 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：三浦 大介

ローマ字氏名：Daisuke Miura

所属研究機関名：東北大学

部局名：工学研究科

職名：助教

研究者番号 ( 8 桁 ) : 90708455

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。