

令和 6 年 6 月 23 日現在

機関番号：51401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04624

研究課題名（和文）一軸異方性を有する金属強磁性体の有限温度磁気特性に関する理論研究

研究課題名（英文）Theoretical study of finite-temperature magnetic properties of ferromagnetic metals with uniaxial magnetic anisotropy

研究代表者

三浦 大介 (Miura, Daisuke)

秋田工業高等専門学校・その他部局等・准教授

研究者番号：90708455

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では一軸磁気異方性を有する強磁性金属を想定し、微視的立場から種々の磁気特性の温度依存性を議論した。一般に、遍歴電子有限温度磁性理論をCurie点の高い物質に適用することは計算機負荷的に難易度が高いが、我々はコヒーレントポテンシャル近似を用いることでこれをクリアし、以下のような成果を得た：(1) Curie温度として現実的な値が得られた。(2) 縦・横帯磁率においてCurie-Weiss則を再現することができた。(3) 結晶磁気異方性定数の温度依存性についてAkulov-Zener-Callen-Callen則を再現することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、環境負荷が小さく且つ特定国に偏在しない磁性材料に対する社会的関心が高くなってきており、特に、重希土類を用いない実用材料の開拓が求められている。遷移金属合金は有力な候補の一つであるが、その有限温度磁気特性を理論的に記述することは困難であった。今回、実際にバンド理論によってこれを記述し、数値計算による実行可能性を示したことは、今後の物質設計における理論的基盤を築くために重要な成果であると考えられる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we have investigated ferromagnetic metals with uniaxial magnetic anisotropy and discussed the temperature dependence of various magnetic properties from microscopic viewpoints. Generally, it is difficult to apply itinerant-electron finite-temperature magnetism theory to materials with a high Curie temperature due to high computational load. We have solved this problem by using the coherent potential approximation and obtained the following results: (1) a realistic value was obtained for Curie temperatures. (2) the Curie-Weiss law in longitudinal and transverse magnetic susceptibilities was reproduced. (3) the Akulov-Zener-Callen-Callen law for the temperature dependence of the magnetocrystalline anisotropy was reproduced.

研究分野：磁性理論

キーワード：磁気異方性 有限温度磁性

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

帯磁率は物質応答を記述する基本量の 1 つであり、これまでに膨大な知見が蓄積されてきている。ただし、Fe や FePt といった実用金属磁性材料の帯磁率の温度特性の定量的記述には、以下のような理由から既存理論の拡張 (または新規構築) を必要とする: (i) 電子系のスピン分極が大きいため有限温度ではスピンの横揺らぎが重要であり、Curie 点も高い; (ii) 遍歴磁性体であり、バンド構造が重要である; (iii) 遍歴磁性体の $T > 0$ における結晶磁気異方性エネルギーの理解が不足している; 端的に言うと、伝統的な遍歴磁性理論の援用や、Heisenberg モデルに基づいた議論が困難な系であると考えられる。また、磁気異方性がある場合の扱いも少なく、故に横帯磁率の温度特性の支配因子の理解も十分ではない。本研究では、このような学術的背景の下、次節に述べる目的を設定した。

2. 研究の目的

- (i) 強磁性金属の帯磁率を定量的に記述するための理論を、単に形式的に書き下すだけでなく、実際に数値計算可能な形式に新規構築し、その実行可能性を示すこと。
- (ii) 上記理論により帯磁率を全温度領域において統一的に記述し、その温度特性の支配因子を解明すること。
- (iii) 異方性磁場や磁気異方性定数といったその他の物理量との相関を示し、それらが示す温度特性を解明すること。

3. 研究の方法

金属磁性合金の物性は、電子が結晶内を遍歴することに起因した特徴が大きく反映されたものとなり、従ってその物性理論はバンド理論を前提として構築される必要がある。このことは、本系の有限温度磁気特性を局在スピン描像で議論してはいけないことを示唆しており、その理論的枠組みは、温度上昇によって生じる電子のスピン揺らぎの効果と、その結果形成されるバンド構造が互いに適合するよう配慮されたものでなければならない。加えて、単に式を書き下しただけの形式論ではなく、現実的な計算機負荷の範囲で結果が出るような高い実行性をも求められる。このような要求の下、我々は DLM (disordered local moment) 描像で有限温度磁気特性を捉えることとし、CPA (coherent potential approximation) を利用することで高度な実行可能性を確保することとした。このアプローチはヨーロッパの一部の理論グループにおいて (少なくとも) 1980 年代から検討されてきており、一定の成果が見込まれることから採用した。ただし、本研究課題で最重要課題の 1 つとなっている遍歴電子起源の結晶磁気異方性の温度依存性に関しては、世界的に見てもほとんど未着手の状態であると言ってよく、相応のインパクトがあると考えている。以下、永久磁石材料の性能指標として飽和磁化 $M(T)$ 、一軸磁気異方性定数 $K_u(T)$ 、Curie 温度 T_C を考える (T : 温度)。これらのうち、 $K_u(T)$ は元来現象論的定数であるため、それを微視的に定義するやり方は一意的でなく、しばしば理論的取扱い上の困難さの原因となるが、本研究ではより実験に近いと思われる立場から、すなわち磁化曲線に根拠を置いて $K_u(T)$ を定義する。

一軸磁気異方性を有する磁性体を考え、磁化容易軸を z 軸とし、磁化困難軸の 1 つとして x 軸を選択する。外部磁場 $\mathbf{h} = (h_x, h_y, h_z)$ を印加したときの磁化を $\mathbf{M}_h(T) =$

$(M_h^x(T), M_h^y(T), M_h^z(T))$ とするとき,

$$M_{(h_A, 0, 0)}^x(T) = M_{(h_A, 0, 0)}^z(T), \quad (1)$$

によって, 異方性磁場 $h_A(T)$ を定義する. これによって一軸磁気異方性定数 $K_u(T)$ を

$$K_u(T) = \frac{1}{2} M(T) h_A(T), \quad (2)$$

で定義する. 飽和磁化 $M(T)$ は (1) の左辺 (または右辺) の大きさと与えるものとし, Curie 温度は

$$M(T_C) = 0, \quad (3)$$

を満たす最小の温度で定義する. このように, 原理的には外部磁場が印加された状態の磁化から我々が必要とする性能指標の全てが得られることになる.

結晶磁気異方性 (MAE) の温度特性に関して, 遍歴スピン磁性と局在スピン磁性とは異なった振る舞いを呈することが知られている. それは現象論的に $K_u(T) \propto M(T)^\alpha$ と表現したときにははっきりと現れ, 物質にもよるが一軸 MAE においては $\alpha \approx 2$ または $\alpha \approx 3$ 程度になるケースが多い. 特に後者 ($\alpha \approx 3$) については局在電子系と配位子場理論を組み合わせることで摂動論的に導出することができ, 研究総説にまとめた著者らの名から Callen—Callen 則と呼ばれることがある. また, 最近はスピン模型における数値計算法 (Monte-Carlo 法) によっても確認されており, 非摂動論的という意味でもかなり広く成立するものとみられる. 従って, $\alpha \approx 3$ は局在スピン系が示す一軸 MAE の特徴といつてよい. 一方, $\alpha \approx 2$ の振る舞いを局在スピン模型から自然に理解することは難しく, 遍歴スピン磁性の特徴であることを匂わせる. この検討のため, 我々は遍歴電子模型において有限温度磁気特性を論じることとした. ただし, はじめに述べたように遍歴電子磁性の $K_u(T)$ 計算はほとんど例がなく, どの程度の計算機負荷が発生するののかも未知数の状態であった. 少なくとも, 磁化困難軸方向への外部磁場の印加は, 系の対称性を破壊しスピン構造の複雑化を招くため, 数値計算収束の障害になることが明らかである. そこで我々は最初に, 一軸 MAE を有する遍歴電子模型の中で最も単純なもの (自由度が低いもの) を採用し, $K_u(T)$ を記述することにした.

4. 研究成果

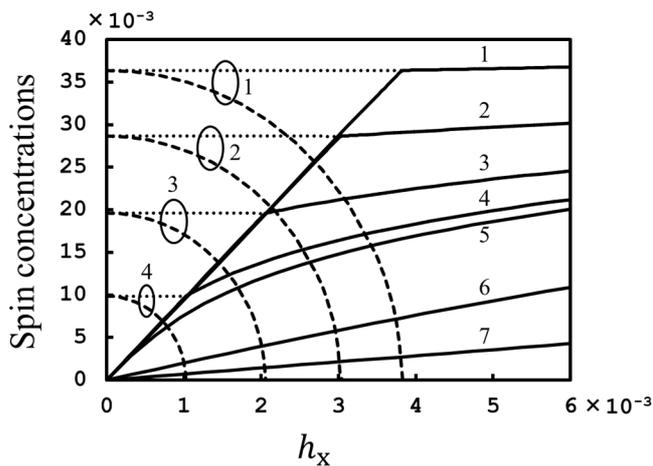


図 1. スピン濃度の外部磁場依存性. 実線が $M_h^x(T)$, 破線が $M_h^z(T)$, ドット線が $M(T)$ である. 1~7 の数字は T が異なることを意味し, 数字が大きい方がより高温である.

交換分裂を起こした単一バンドに Rashba 型のスピン軌道相互作用が働いている 2 次元電子系に外部磁場を印加した状況を強結合模型 (正方格子) で考える [1,2]. 模型パラメータはゼロ磁場・絶対零度において強磁性かつ一軸 MAE が安定状態となるよう設定する (磁性状態の検証は DLM-CPA の範囲で行う). 図 1 に示したのは $M_h(T)$ の各成分を $\mathbf{h} = (h_x, 0, 0)$ として h_x の関数で数値計算したものである. 対称性によって全てのケースで $M_h^y(T) = 0$ である. 各線群に与えた 1~7 の数字は温度が異なる結果であることを表し, 数字の大きい方がより高温である. 1 の数

字が振られている線群は（ほぼ）絶対零度での結果である．5～7の実線は Curie 温度以上の結果であり， $M_h^x(T) = M(T)$ （実線）， $M_h^y(T) = M_h^z(T) = 0$ （プロットなし）となっている．定義によって，実線がドット線に触れた磁場の値が異方性磁場 $h_A(T)$ ということになる．全ての温度で h_A 以上の h_x においても磁場の増大と共に $M(T)$ （ドット線）が増加し続けており，Zeeman エネルギーによるバンド構造のスピンの増大効果が現れている． h_A 以下の磁場依存性においては $M(T)$ の大きさに殆ど変化がなく，スピンの磁場方向に傾くことで Zeeman エネルギーを得ていることがわかる．Curie 温度以下での $h < h_A$ に対する $M_h^x(T)$ の線形性の高さ，その傾きが温度によらず一定であることは特筆に値する．これが意味するものを見るために，ゼロ磁場横微分帯磁率 $\chi_{\perp}(T)$ を

$$\chi_{\perp}(T) = \lim_{h_x \rightarrow 0} \frac{\partial M_{(h_x, 0, 0)}^x(T)}{\partial h_x}, \quad (4)$$

で定義しよう．数値計算の結果から

$$M_h^x(T) \approx \chi_{\perp}(T) h_x \quad \text{for } h_x < h_A, \quad (5)$$

$$\chi_{\perp}(T) \approx \text{const.} \quad \text{for } T < T_C, \quad (6)$$

がよい近似であることがわかる． $h_x = h_A$ において $M_h^x(T) = M(T)$ となることから，(5)式より

$$h_A(T) = \frac{M(T)}{\chi_{\perp}(T)}, \quad (7)$$

である．これを (2)式に代入すれば

$$K_u(T) = \frac{1}{2\chi_{\perp}(T)} M(T)^2, \quad (8)$$

を得る．(6)式によって $\chi_{\perp}(T)$ の温度依存性を無視すると， $K_u(T)$ の温度依存性として

$$K_u(T) \propto M(T)^2, \quad (9)$$

が得られる．すなわち，我々の狙い通り， $\alpha = 2$ が遍歴電子模型から再現されたことになる．このように，磁気異方性の温度依存性を議論するのに $\chi_{\perp}(T)$ はよい道具となりうる．また，ゼロ磁場の数値計算で済むことから，外部磁場による収束性の悪化を回避することが可能である．も

ちろん，そのためには定義式(4)の極限を解析的に行う必要があるため，計算機にとっては易しくとも，定式化自体は複雑で見通しの悪いものとなる．

ここで DLM-CPA の有効性を確認するため，帯磁率の逆数（逆帯磁率）を調べる．逆帯磁率の温度依存性は常磁性状態において直線的になることが期待される（Curie—Weiss 則）．比較のため，ゼロ磁場

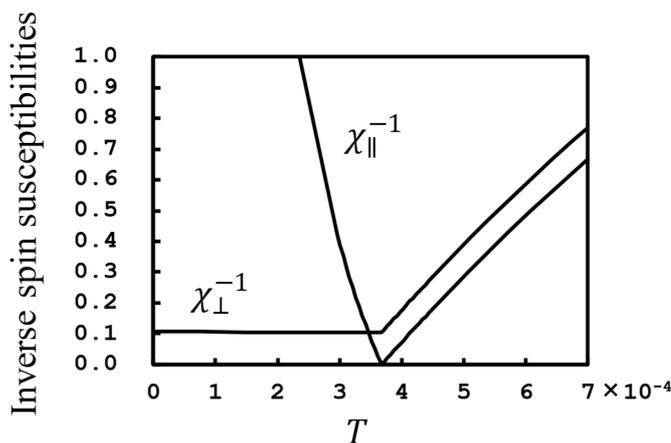


図 2．計算された逆帯磁率の温度依存性の 1 例． $\chi_{\parallel}(T)$ を縦微分帯磁率 $\chi_{\parallel}(T)$ を χ_{\parallel} は縦微分帯磁率， χ_{\perp} は横微分帯磁率である．

$$\chi_{\parallel}(T) = \lim_{h_x \rightarrow 0} \frac{\partial M_{(0, 0, h_z)}^z(T)}{\partial h_z}, \quad (10)$$

で導入しておく．これは磁化容易軸方向における磁化の応答を記述している．図 2 に DLM-CPA において計算された逆帯磁率の温度依存性を示した． $T \sim 3.7$ 付近が Curie 温度である．この図

から、常磁性状態における Curie—Weiss 則が確認できる。 $\chi_{\perp}(T)^{-1}$ と $\chi_{\parallel}(T)^{-1}$ が示す Curie—Weiss 則にギャップがあるのは Rashba 型スピン軌道相互作用による磁気異方性が原因である。スピン軌道相互作用の強さ λ を大きくすると $\chi_{\perp}(T)^{-1}$ も大きくなる。我々は λ に関する摂動論によって $\chi_{\perp}(T)^{-1} \propto \lambda^2$ になることも示している。また、強磁性状態での χ_{\perp} の高い一定性(6)式も容易に確認できる。

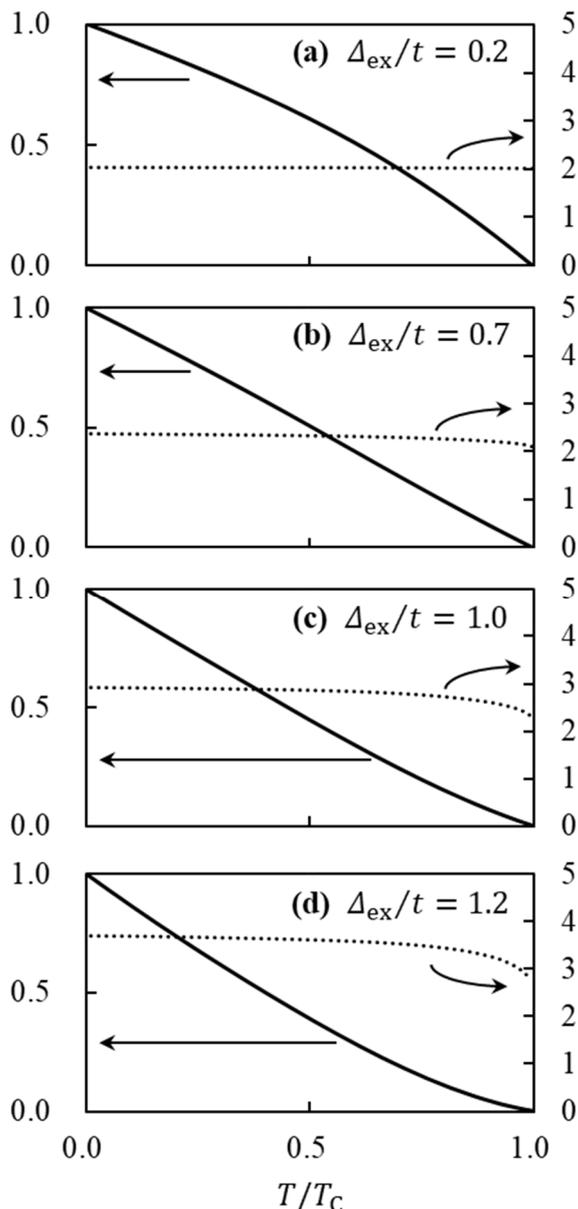


図 3 . $K_u(T)$ (実線) と $\alpha(T)$ (ドット線) の温度依存性 . $K_u(0) = 1$ に規格化済み . 各図は上から下に向かって交換磁場の大きさ Δ_{ex} を大きくしたものである . t は最近接サイト間の hopping integral の大きさである .

と考えた方が良いでしょう .

< 引用文献 >

- [1] D. Miura and A. Sakuma, J. Phys. Soc. Jpn. 90, 113601 (2021)
- [2] D. Miura and A. Sakuma, J. Phys. Soc. Jpn. 91, 023706 (2022)

5 以上のように、遍歴電子模型において高精度で $\alpha = 2$ となる状況証拠を得てきたが、
4 必ずしもそうではないことが $\alpha(T)$ の Δ_{ex}
3 依存性を調べることでわかる。ここで、 Δ_{ex}
2 には交換磁場の大きさであり、バンド構造にス
1 ピン分極を与える模型パラメータである。図
0 3 に示したものは $K_u(T)/K_u(0)$ (実線) と
5 $\alpha(T)$ (ドット線) の温度依存性を、幾つかの
4 Δ_{ex} に対してピックアップしたものである。
3 (a) は我々がこれまでの結果で使用してき
2 きた設定値で、バンド幅に対して十分小さいス
1 ピン分極を与えるものとなっている。この
0 とき $\alpha(T)$ は殆ど温度に依存せず、 $\alpha = 2$ を
5 示している。ここから Δ_{ex} を徐々に増加さ
4 せるとある程度一定な温度依存性を保ちつ
3 つつも、 α が底上げされていく様子が観測さ
2 れる。このことは伝導電子のスピン
1 の局在性が上がっていき、局在スピン系の特
0 徴である $\alpha = 3$ に接近するようにもみえるが、
5 (d) に示されるとおりその値は 3 を超えていく。
4 この意味で、遍歴スピン磁性の極限を Δ_{ex} : 小
3 とし、一方で局在スピン磁性の極限を Δ_{ex} : 大
2 と考えて微視的理論によって両者がうまく
1 連続的に繋がれると主張するのは難しい
0 ように思われる。また、スピン模型における
5 計算から $\alpha > 3$ を得ることは不可能では
4 ないが、物理的状況から不自然と思われる異
3 方性項の追加やパラメータ設定が必要である。
2 それゆえ、そもそも有効スピン模型でこれら
1 の結果を解釈しようとする自体不適切
0 である可能性があり、純粋に遍歴スピン磁性
5 の持つバリエーションの豊かさの結果であ

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yahagi Yuta, Miura Daisuke, Sakuma Akimasa	4. 巻 91
2. 論文標題 Perpendicularly Polarized Spin Hall Effects Induced by Spin-Dependent Scattering in Ferromagnetic Metals	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 83701
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/jpsj.91.083701	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Sakuma Akimasa, Miura Daisuke	4. 巻 91
2. 論文標題 First-Principles Calculation of Transport Properties of Heusler Alloy $\text{Co}_{2-x}\text{MnAl}$ at Finite Temperatures	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 84701
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/jpsj.91.084701	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Hiramatsu Ryoya, Miura Daisuke, Sakuma Akimasa	4. 巻 92
2. 論文標題 Temperature Variation of Gilbert Damping Constant in $3d$ Transition Metals from First Principles	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 44704
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/jpsj.92.044704	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Miura Daisuke, Sakuma Akimasa	4. 巻 91
2. 論文標題 Temperature Dependence of Magnetocrystalline Anisotropy in Itinerant Ferromagnets	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 23706
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.91.023706	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Miura Daisuke, Sakuma Akimasa	4. 巻 90
2. 論文標題 Theoretical Study of Temperature Dependence of Spin Susceptibility in Anisotropic Itinerant Ferromagnets	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 113601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.113601	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hiramatsu Ryoya, Miura Daisuke, Sakuma Akimasa	4. 巻 15
2. 論文標題 First-principles calculations for Gilbert damping constant at finite temperature	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 13003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/ac4205	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------