

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月 7日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22560654

研究課題名（和文） 磁性合金および磁性積層膜の電気伝導度の第一原理計算

研究課題名（英文） First-principles calculation of conductivity of magnetic alloys and magnetic multilayers

 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

研究成果の概要（和文）：電子状態に対する第一原理計算手法を久保公式に適用することで、物質の電気伝導度テンソルを定量評価するプログラムを作成した。これを用いてスピントロニクス材料として期待される強磁性体において、原子構造や磁気構造の乱れ、スピン揺らぎなどが、電気抵抗率、異方性磁気抵抗効果（AMR）、異常ホール効果（AHE）、およびスピン分極率などの特性にどのような影響を与えるかを定量的に評価することができた。

研究成果の概要（英文）：Within the framework of the Kubo formula, we developed a calculation tool of conductivity tensor of magnetic materials by using the first principles technique for the electronic structure. Applying this method to the spintronics materials, we studied the effects of chemical disorder and spin fluctuation on the electrical resistivity, anomalous magnetoresistance effects (AMR), anomalous Hall effect and spin polarization.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
2012年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・金属物性

キーワード：電気伝導、電子状態、第一原理計算

## 1. 研究開始当初の背景

巨大磁気抵抗効果（GMR）発見後の初期段階におけるスピントロニクスは、主に金属中のスピン依存伝導の機構と制御技術に関する研究が中心であり、産業界の強い要請も相まって高密度磁気記録用再生ヘッドの実現に至った。その後、スピン移行トルクやスピンポンピングおよびスピンホール効果の提案と実現によって、スピン流と磁気構造、スピン動力学およびスピン軌道相互作用などの関わりについての研究が理学と工学の枠

を超えて精力的に行われるようになってきた。このようにスピントロニクスの研究の枠組みは大きな広がりを持って進展してきたがデバイス化に目を向けたとき、定性的な理解すら得られていない現象が山積し、実用化に向けた研究の大きな課題となっている。これは材料に対する理解、特に最も重要なスピン分極率などに関する情報が不十分であることが大きな要因となっていると考えられる。

スピン分極率は、多くの場合↑スピンと↓ス

ピンのフェルミ準位における電子状態密度（それぞれ  $D_{\uparrow}$ 、 $D_{\downarrow}$  とする）から  $P_D = (D_{\uparrow} - D_{\downarrow}) / (D_{\uparrow} + D_{\downarrow})$  で定義され、トンネル磁気抵抗 (TMR) 変化率などの解析に用いられる。状態密度は電子状態の計算から容易に求めることができるが、これを用いた  $P_D$  から TMR 変化率を評価した値は実測と合わないことが多い。これは、フェルミ準位上にある電子が全て等しく伝導に関与するわけではなく、例えば s 電子と d 電子では大きく異なるものと考えられるのが自然である。実際、Butler 等 (Phys.Rev.B63,054416(2001)) は Fe/MgO/Fe において Fe の s 軌道からなる  $\Delta_1$  バンドが TMR に最も大きな寄与を示し、その後の高 TMR 素子開発に大きく貢献した。

一方、スピン移行トルクやスピン蓄積を記述する理論においては  $\uparrow$  スピンと  $\downarrow$  スピンの電気伝導度（それぞれ  $\sigma_{\uparrow}$ 、 $\sigma_{\downarrow}$  とする）を用いた  $P_{\sigma} = (\sigma_{\uparrow} - \sigma_{\downarrow}) / (\sigma_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow})$  が材料パラメータとして導入される。しかし、物質の  $\sigma_{\uparrow}$  や  $\sigma_{\downarrow}$  に関する情報は殆ど得られてなく、 $D_{\uparrow}$  と  $D_{\downarrow}$  に比例するとして  $P_D$  と同様に扱われることが多い。当然、上述した事情からこのような扱いは妥当ではなく、実験を解析する上での隘路となるケースがしばしばである。これら伝導に関係するパラメータの殆どはもともとバルクにおける物性値であるにもかかわらず、いまだに理論的なサポートが得られないまま経験値に頼っていること、さらにその経験値の不確定要素が大きいことはスピントロニクス研究の発展にとって大きな障害となることは否めない。

## 2. 研究の目的

本研究では、(1) 遷移金属合金および磁性積層膜の電気伝導度 ( $\sigma$ ) を第一原理計算により求める手法を確立し、原子構造や磁気構造の乱れ、あるいはスピン揺らぎなどが伝導特性に与える影響を定量レベルで明らかにする、(2) 磁性体や積層膜の電気伝導度の  $\uparrow$  スピンと  $\downarrow$  スピンの成分 ( $\sigma_{\uparrow}$ 、 $\sigma_{\downarrow}$ ) を評価することにより、スピントロニクス研究に最も重要なパラメータであるスピン分極率  $P = (\sigma_{\uparrow} - \sigma_{\downarrow}) / (\sigma_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow})$  を定量評価する、(3) 巨大磁気抵抗 (GMR) 特性を第一原理計算から定量的に評価し、物質の電子状態と GMR 特性の関係を明らかにする、ことを目的とする。

## 3. 研究の方法

我々はこれまで強結合-LMTO 法とよばれる電子状態の第一原理計算、およびこれにコヒーレントポテンシャル近似 (CPA) を組み込んだ不規則合金の電子状態の計算手法を確立している。また、複雑な磁気構造 (ノンコリニア構造) やスピンの乱れなども CPA

の下で電子状態の計算に取り込むことができる。そこで初年度は、(久保公式に基づく) 電気伝導度の第一原理計算プログラムを完成させ、種々の磁性体やさまざまなスピン配列に対して電気伝導度の計算を実行し実験との比較から妥当性の検討を行っていく。特に実験との比較を行う上では合金の伝導度の組成依存性など系統的なデータとの比較が有効である。図 1 は我々が最近行った FeCo 合金の電気抵抗率の組成依存性の結果である。FeCo 合金は TMR 素子の強磁性電極として大きな期待が寄せられている系である。組成依存性を含め定量的にも実験とよい一致を示していることが確認される。

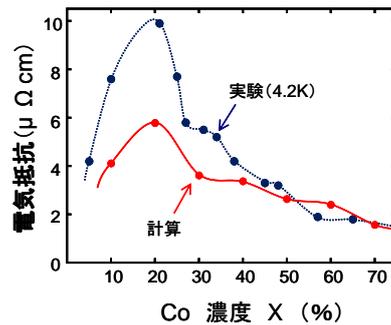


図 1 Fe<sub>100-x</sub>Co<sub>x</sub> の電気抵抗率の Co 濃度依存性

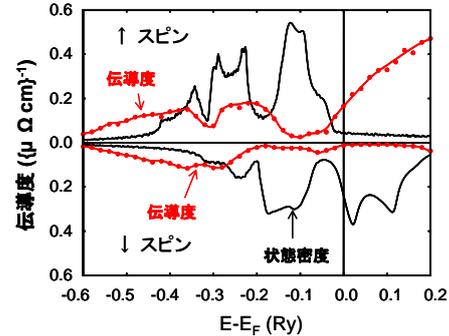


図 2 Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> のスピン別伝導度 ( $\sigma_{\uparrow}$  と  $\sigma_{\downarrow}$ ) の一電子エネルギー依存性と電子状態密度

また、図 2 は Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> 合金のフェルミ準位を rigid band 的に変化させたときの、スピン別伝導度 ( $\sigma_{\uparrow}$  と  $\sigma_{\downarrow}$ ) と状態密度 ( $D_{\uparrow}$  と  $D_{\downarrow}$ ) を合わせてプロットしたものである。 $\sigma_{\uparrow}$  と  $\sigma_{\downarrow}$  の比やエネルギー依存性 ( $\sigma_{\uparrow}(E)$  と  $\sigma_{\downarrow}(E)$ ) は明らかに ( $D_{\uparrow}(E)$  と  $D_{\downarrow}(E)$ ) とは異なることが確認され、これらの遷移金属合金のスピン分極率は、状態密度から見積もられる値とは著しく異なるものであることが理解される。本研究では、計算条件などを含め手法の妥当性の十分な検討を行った上で、スピントロニクス材料の伝導特性の定量評価を行って行く。ここで特に注目したいのは、第一に、伝導度から求められるスピン分極率  $P_{\sigma} = (\sigma_{\uparrow} - \sigma_{\downarrow}) / (\sigma_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow})$  と状態

密度から期待されるスピン分極率

$P_D = (D_{\uparrow} - D_{\downarrow}) / (D_{\uparrow} + D_{\downarrow})$  の比較であり、従来広く用いられてきた  $P_D$  がどの程度妥当であるかを明らかにすること、第二に、電気伝導度  $\sigma = \sigma_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow}$  や  $P_D$  が磁気構造の乱れやスピン揺らぎ（熱励起を想定）によってどのような影響を受けるか、を調べることである。

#### 4. 研究成果

(1) 初年度は、スピントロニクス分野での応用が期待されているホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{MnAl}_{1-x}\text{Si}_x$ 、および  $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-y}\text{Fe}_y\text{Si}$  の電気抵抗率の X、Y 依存性を第一原理計算による評価を行った。完全な規則構造では理想的なハーフメタルとなる  $L2_1$  構造の場合、 $X=0, 1, Y=0, 1$  を除く組成の抵抗率は  $20(\mu\Omega\text{cm})$  程度であり、Fe-Co や Fe-Ni などの合金と同程度である。一方、 $B2$  と  $A2$  構造では  $100(\mu\Omega\text{cm})$  程度で推移しており、 $\text{Co}_2\text{MnSi}$  における抵抗率の測定値と同程度の値が得られている。ここで注目すべきことは、 $\text{Co}_2\text{MnAl}_{1-x}\text{Si}_x$  領域において部分不規則構造である  $B2$  構造の抵抗率が完全不規則構造である  $A2$  のそれより大きいことである。これは、この組成領域の  $B2$  構造がハーフメタル性を維持し、片方のスピン状態にエネルギーギャップがあることを反映したものである。この  $B2$  構造の抵抗率は、 $\text{Co}_2\text{MnAl}_{1-x}\text{Si}_x$  から  $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-y}\text{Fe}_y\text{Si}$  の組成領域に入ると急激に低下するが、これは  $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-y}\text{Fe}_y\text{Si}$  ( $Y>1$ ) においてフェルミ準位が minority spin 状態のバンド内に入りハーフメタル性が消失することを反映したものである。これに伴い  $A2$  構造と  $B2$  構造の抵抗率が  $Y>1$  領域で逆転し、完全不規則構造である  $A2$  構造の抵抗率が部分不規則構造である  $B2$  構造の抵抗率より大きくなる。

(2) 強磁性金属の電気伝導度は、有限温度におけるスピン揺らぎによって低下することが知られているが、実際の物質に対して定量的に評価された例はない。そこでここでは  $\text{bcc-Fe}$  を取り上げ、スピン揺らぎが電気伝導度に具体的にどのように影響するかを第一原理計算から定量レベルの検討を行った。電子状態の計算には、局所スピン密度汎関数法の下で強結合線形マフィンティン軌道 (TB-LMTO) 法を用い、スピン揺らぎは上向きスピンサイトと下向きスピンサイトのランダム配置をコヒーレントポテンシャル近似 (CPA) を用いることによって考慮した。そこで得られたコヒーレントグリーン関数を久保公式に代入して電気伝導度の計算を行った。得られた結果は、電気抵抗率 ( $\rho$ ) の磁化依存性 ( $\rho \propto 1 - (M/M_0)^2$ 、 $M$ : 磁気モーメントの平均値、 $M_0$ : 局所磁気モーメント)

をよく再現し、更に  $M/M_0$  の変化を温度に換算して得られる電気抵抗の温度依存性を定量的によく再現することが分かった。さらに注目すべきことは、スピン揺らぎの程度に応じて、スピン別の電気伝導度 ( $\sigma_{\uparrow}$ 、 $\sigma_{\downarrow}$ ) の大小関係が大きく変化することであり、キュリー温度近傍ではスピン分極率 ( $P = (\sigma_{\uparrow} - \sigma_{\downarrow}) / (\sigma_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow})$ ) が負になる可能性があることである。このことは、これまで絶対零度における電気伝導度から評価していたスピン分極率も有限温度では顕著に異なる可能性があることを示唆しており、スピントロニクス材料の特性評価にスピン揺らぎの影響を考慮する必要性を示すものといえる。

(3) 久保公式の下で、スピン軌道相互作用を考慮した強結合-LMTO 法により、磁性合金の電気伝導度テンソルに関する第一原理計算を行い、原子構造や磁気構造の乱れ、スピン揺らぎなどが電気伝導度、異常磁気抵抗効果 (AMR)、異常ホール効果 (AHE)、スピンホール効果およびスピン分極率に与える影響を定量的に評価した。具体的には、平成 23 年度に作成したプログラムにスピン軌道相互作用を考慮し、Fe-Ni、Fe-Co および Fe-Pt 合金などの物質の様々なスピン配列に対して電気伝導度テンソル (非対角成分を含む) の計算を実行し、AMR や AHE に関する実験との比較を行い、計算の妥当性を確認するとともにこれらの物質のスピントロニクス材料としての可能性の評価検証を行った。

#### 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 14 件)

- (1) Yohei Kota and Akimasa Sakuma, Theoretical Verification of Magnetic Anisotropy in Tetragonal Fe-Co Alloys, Journal of the Magnetism Society of Japan, 査読有, **37** (2), (2013), 17-23, DOI: 10.3379/msjmag.1302R001.
- (2) Kazushige Hyodo, Chiharu Mitsumata and Akimasa Sakuma, Effect of Spin Torque on Magnetization Switching Speed Having Nonuniform Spin Distribution, 査読有, IEEE TRANSACTION ON MAGNETICS, 査読有, **48** (11), (2012), 3951-3954. DOI: 10.1109/TMAG.2012.2198913.
- (3) Yohei Kota and Akimasa Sakuma, Degree of Order Dependence on Magnetocrystalline Anisotropy in Body-Centered Tetragonal FeCo Alloys, Applied Physics Express, 査読有, **5**, (2012) 113002-1-113002-3,

- DOI:10.1143/APEX.5.113002.
- (4) Daisuke Miura and Akimasa Sakuma, Microscopic Theory of Magnon-Drag Thermoelectric Transport in Ferromagnetic Metals, Journal of Physical Society of Japan, 査読有, **81**,(2012),113602-1-113602-3, DOI: 10.1143/JPSJ.81.113602.
- (5) Nobuyuki Umetsu, Daisuke Miura and Akimasa Sakuma, Theoretical Study on Gilbert Damping of Nonuniform Magnetization Precession in Ferromagnetic Metals, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, **81**,(2012) 114716-1-114716-4 ,DOI:10.1143/JPSJ.81.114716.
- (6) Yohei Kota and Akimasa Sakuma, Magnetocrystalline anisotropy in FePt with L10 ordering and tetragonal distortion, Journal of Applied Physics, 査読有, **111**, (2012), 07A310-1-07A310-3, DOI: 10.1063/1.3671436.
- (7) Nobuyuki Umetsu, Daisuke Miura and Akimasa Sakuma, Microscopic theory for Gilbert damping in materials with inhomogeneous spin dynamics, Journal of Applied Physics, 査読有, **111**, (2012), 07D117-1-07D117-3, DOI: 10.1063/1.3675999.
- (8) Daisuke Miura and Akimasa Sakuma, Charge and Spin Transport in Magnetic Tunnel Junctions: Microscopic Theory, Journal of Physical Society of Japan, 査読有, **81**,(2012), 054709-1-054709-6, DOI: 10.1143/JPSJ.81.054709.
- (9) Akimasa SAKUMA, First-Principles Study on the Gilbert Damping Constants of Transition Metal Alloys, Fe-Ni and Fe-Pt systems, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, **81** (8), (2012), 084701-1-084701-5, DOI: 10.1143/JPSJ.81.084701.
- (10) Yohei KOTA and Akimasa SAKUMA, Relationship between Magnetocrystalline Anisotropy and Orbital Magnetic Moment in L10-Type Ordered and Disordered Alloys, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, **81** (8), (2012), 084705-1-084705-6, DOI: 10.1143/JPSJ.81.084705.
- (11) Y. Kota and A. Sakuma, Spin-dependent Electrical Resistivity in Ferromagnets by Magnetic Fluctuations, J. Magn. Soc. Jpn., 査読有, **35**, 2011, 374-379. DOI:なし
- (12) Y. Kota and A. Sakuma, First-Principles Study of Electrical Resistivity in Co<sub>2</sub>MnSi Compounds, IEEE Trans. Magn., 査読有, **47**, 2011, 4405-4408, DOI: 10.1109/TMAG.2011.2158300
- (13) Y. Kota and A. Sakuma, First-principles study for electronic structure and physical property of Co-based Heusler alloys, Journal of Physics: Conf. Ser., 査読有, **266**, 2011, 012094-1- 012094-5. DOI: 10.1088/1742-6596/266/012094
- (14) D. Miura and A. Sakuma, Charge and spin currents in magnetic multi layers in the presence of both electric field and spin dynamics, Journal of Physics: Conf. Ser., 査読有, **266**, (2011), 012081-1- 012081-5. DOI: 10.1088/1742-6596/266/012081
- [学会発表] (計 27 件)
- (1) 梅津信之, 三浦大介, 佐久間昭正, 「不純物散乱によるスピン緩和の理論研究」, 日本物理学会第 68 回, 2013 年 3 月 26 ~29 日, 広島
- (2) 兵頭一茂, 小田洋平, 佐久間昭正, 「第一原理計算による bct-FeCo 合金の異常ホール伝導度に対する研究」, 日本物理学会第 68 回、2013 年 3 月 26~29 日, 広島
- (3) Y. Kota, and A. Sakuma, Theoretical verification of magnetocrystalline anisotropy in tetragonal Fe-Co alloys, ICAUMS 2012, October 2-5, Nara, Japan.
- (4) N. Umetsu, D. Miura and A. Sakuma, Microscopic theory on the spin relaxation in an inhomogeneous spin dynamics, The 19th International Conference on Magnetism, 2012, July 9-13, Busan, Korea.
- (5) D. Miura and A. Sakuma, Microscopic theory of magnon-drag thermodynamic transport in ferromagnetic metals, The 19th International Conference on Magnetism, 2012, July 9-13, Busan, Korea.
- (6) Y. Kota and A. Sakuma, First-principles study of conductivity tensor in transition metals and alloys, The 19th International Conference on Magnetism, 2012, July 9-13, Busan, Korea.
- (7) K. Hyodo, C. Mitsumata, and A.

Sakuma, "Effect of Spin Torque on Magnetization Switching Speed Having Nonuniform Spin Distribution, Intermag, 2012, May 7-11, Vancouver, Canada.

- (8) 梅津信之, 三浦大介, 佐久間昭正、不均一スピンドYNAMIXSにおけるスピン緩和機構、日本物理学会第 67 回年次大会、2012 年 3 月 26 日、関西学院大学
- (9) 小田洋平, 佐久間昭正、遷移金属合金のスピンホール伝導度の第一原理計算、日本物理学会第 67 回年次大会、2012 年 3 月 25 日、関西学院大学
- (10) 三浦大介, 佐久間昭正、強磁性金属におけるマグノン・ドラッグ熱電特性の微視的理論、日本物理学会第 67 回年次大会 2012 年 3 月 24 日、関西学院大学
- (11) 佐久間昭正、ギルバート緩和に関する理論と計算、日本磁気学会第 183 回研究会、2012 年 3 月 22 日、中央大学駿河台記念館
- (12) 小田洋平, 佐久間昭正、遷移金属合金の伝導度テンソルの第一原理計算、第 35 回日本磁気学会学術講演会、2011 年 9 月 28 日、新潟コンベンションセンター
- (13) 小田洋平, 佐久間昭正、遷移金属合金の伝導度テンソルの第一原理計算、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 23 日、富山大学
- (14) 三浦大介, 梅津信之, 佐久間昭正、磁気トンネル接合におけるスピンポンピングの微視的記述、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 22 日、富山大学
- (15) 兵頭一茂, 佐久間昭正、スピン電場により誘起されるスピン流の磁化ダイナミクスへの影響、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 21 日、富山大学
- (16) 小田洋平, 佐久間昭正、遷移金属合金の AMR の第一原理計算、日本物理学会第 66 回年次大会、2011 年 3 月 25 日、新潟大学
- (17) 三浦大介, 佐久間昭正、磁気トンネル接合においてスピンドYNAMIXSにより誘起されるスピントルクの微視的記述、日本物理学会第 66 回年次大会、2011 年 3 月 25 日、新潟大学
- (18) 梅津信之, 三浦大介, 佐久間昭正、磁性多層膜のギルバート緩和に関する微視的理論 II、日本物理学会第 66 回年次大会、2011 年 3 月 25 日、新潟大学
- (19) 佐久間昭正、磁性体の磁気緩和の微視的理論、応用物理学関連連合講演会、2011 年 3 月 24 日、神奈川工科大学
- (20) 佐久間昭正、スピンの動力学に伴う電流とスピン流の微視的理論、第 33 回スピニエレクトロニクス専門研究会、2011 年 1 月 14 日、中央大学

- (21) A. Sakuma and D. Miura、Microscopic Theory of Charge and Spin Currents in Magnetic Tunnel Junctions、International Conference of AUMS、2010, Dec., 7、Jeju Island, Korea
- (22) 小田洋平, 佐久間昭正、強磁性遷移金属合金のスピン依存抵抗の第一原理計算、第 39 回ナノマグネティクス専門研究会、2010 年 12 月 3 日、中央大学
- (23) D. Miura and A. Sakuma、Microscopic theory of spin torque induced by spin dynamics in magnetic tunnel junctions、MMM2010、2010, Nov., 16、Atlanta, USA
- (24) 小田洋平, 佐久間昭正、強磁性金属のスピン状態に依存した散乱効果を含む電気抵抗率の第一原理計算、日本物理学会 2010 年秋季大会、2010 年 9 月 25 日、大阪府立大学
- (25) 梅津信之, 三浦大介, 佐久間昭正、磁性多層膜のギルバート緩和に関する微視的理論、日本物理学会 2010 年秋季大会、2010 年 9 月 25 日、大阪府立大学
- (26) 三浦大介, 佐久間昭正、電場とスピンドYNAMIXSにより誘起される磁性多層膜におけるスピン流と電流の微視的記述、日本物理学会 2010 年秋季大会、2010 年 9 月 25 日、大阪府立大学
- (27) 小田洋平, 佐久間昭正、強磁性体の静的スピン揺らぎによる磁気抵抗効果、日本磁気学会学術講演会、2010 年 9 月 6 日、つくば国際会議場

〔図書〕(計 1 件)

- (1) 佐久間昭正、磁性の電子論、共立出版、2010、343 ページ

〔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

土浦 宏紀 (TSUCHIURA HIROKI)

東北大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：30374961

(3)連携研究者

なし