

氏 名	ひょうどう かずしげ 兵 頭 一 茂
授 与 学 位	博士 (工学)
学 位 授 与 年 月 日	平成28年3月25日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 応用物理学専攻
学 位 論 文 題 目	遷移金属合金の異常ホール効果に関する理論研究
指 導 教 員	東北大学教授 佐久間 昭正
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 佐久間 昭正 東北大学教授 安藤 康夫 東北大学教授 北上 修 東北大学教授 水上 成美

論文内容要旨

近年磁気工学分野で注目を浴びているスピンオービトロニクスは、電子の運動がスピン軌道相互作用 (SOI) を介してスピン自由度と相関を持つことに着目し、電場によりスピン自由度の制御を目指す分野である。異常ホール効果 (AHE) は、SOI に起因した、電場によって駆動されるスピン依存の伝導現象であり、上のスピンオービトロニクス分野において最も古くから知られている現象の一つである。その解明は、学術的興味と共に、近年ではスピンオービトロニクスのような応用面からも注目されている。応用の観点では、特に強磁性金属中の AHE の理解が欠かせない。

しかしながら、現在においても強磁性金属の AHE は十分な知見が得られていない現状がある。その要因として、(1)物質中における AHE は、電子の散乱に起因しない内因性機構と散乱効果に起因する外因性機構の和として得られていること、(2)各機構の強さは強磁性金属中で同程度とされることの2点が挙げられる。このため、物質の AHE の理解においては、得られた異常ホール伝導度(σ_{xy})がどの機構から主に生じているかを明らかにすることが重要である。

実験的に各機構の寄与を分離することは現在においても困難な問題とされている。これは、内因性・外因性機構は物理的起源が大きく異なるにも関わらず、温度変化に対する依存性が類似と考えられることに起因している。

一方、理論的なアプローチとして第一原理計算を用いた AHE の評価が行われている。この手法の利点として、内因性・外因性機構に寄与する微視的な伝導過程を区別できることが挙げられる。たとえば、散乱のない系を考慮することで、外因性機構の起源である電子の散乱が無くなるため、内因性機構のみを評価することが可能である。また、近年ではより現実に近い系として電子の散乱がある合金を考慮し、内因性・外因性機構の両方の寄与を含んだ σ_{xy} の計算、またそれらを分離して評価する試みも行われている[1]。この分離手法はモデル計算[2]で示された、各機構に対して有力な伝導過程の差に基づいて行われている。

しかし最近のモデル計算において、各機構は[2]で示された伝導過程に加えて、さらに多くの過程が寄与することが明らかとなった[3]。これらの効果を取り入れることで、先行研究[1]よりも、正確な各機構の評価が可能となると期待される。

本研究の目的は、物質の AHE を電子状態の観点から理解することである。研究手法として、第一原理計算手法を用いた。上述の背景を元に

以下の課題を設定した。

- 1, 第一原理計算を用い, [3]の描像に基づいて σ_{xy} の各機構を個別に評価する手法を構築する
- 2, 1で得られた手法から, 計算対象のAHEに主要な機構を求める。また, その機構の起源を電子状態の観点から理解することで, 物質のAHEを電子状態から理解するという目的を実現する。

まず, 1の内容について取り組んだ。最初に線形応答の範囲で電導度を計算可能な Kubo-Streda 公式を用いて, 第一原理的に得られた電子状態から, σ_{xy} を計算できるようなプログラムを作成した。次に, 先行研究同様[1], 電子の散乱効果を第一原理的に取り入れることで, 散乱に依らず生じる内因性機構と共に, 散乱に起因する外因性機構の和を計算することに成功した。これらのプログラムを元に, 各機構に寄与する伝導過程の差[3]から, 第一原理的に内因性・外因性機構を個別に評価する手法を構築した。これによって, 1の課題を達成することができた。

次に2の内容に取り組んだ。計算の対象として, (a): Ni系合金で電子数が類似な $\text{Ni}(1-x)\text{Z}(x)$ ($\text{Z}=\text{Co}, \text{Ni}, \text{Mn}$)合金, (b):デバイス材料として応用が期待される FePt/FePd 合金を候補とし, AHEの理解を目指した。

まず, 1で得られた計算手法の妥当性の確認と, 先行研究で用いられる手法との比較を行った。図1は, FePt/FePd 合金について, 1で得られた本計算手法と, 既存の先行研究の手法[1]でそれぞれ内因性機構から生じる σ_{xy} を評価した結果である。横軸は結晶の規則度 S を示しており, $S=1$ が完全に規則配列した結晶を示し, 散乱のない系を, また $S=0$ が完全にランダム構造を示し, 散乱が大きい系を示す。赤実線が FePt , 青実線が FePd についてそれぞれの手法で得られた結果である。また, 点線はそれぞれの合金で散乱のない $S=1$ での計算結果を示している。

この図で計算されている内因性機構は, 電子の散乱に起因せず生じる性質を持つ。したがって, $S=1$ と $S<1$ で σ_{xy} は連続的に変化すると考えられる。実際に本計算手法で得られた結果に目を向けると, FePt/FePd 共に σ_{xy} は $S=1$ 近傍で点線の値から連続的に変化しており, 上の物理的特性を満たしていることが分かる。一方, 先行研究の手法で得られる結果は, $S=1$ 近傍において $S=1$ からの不連続な飛びが見られる。この結果は, 先行研究における内因性機構の区分に外因性的な効果が含まれていることを示している。

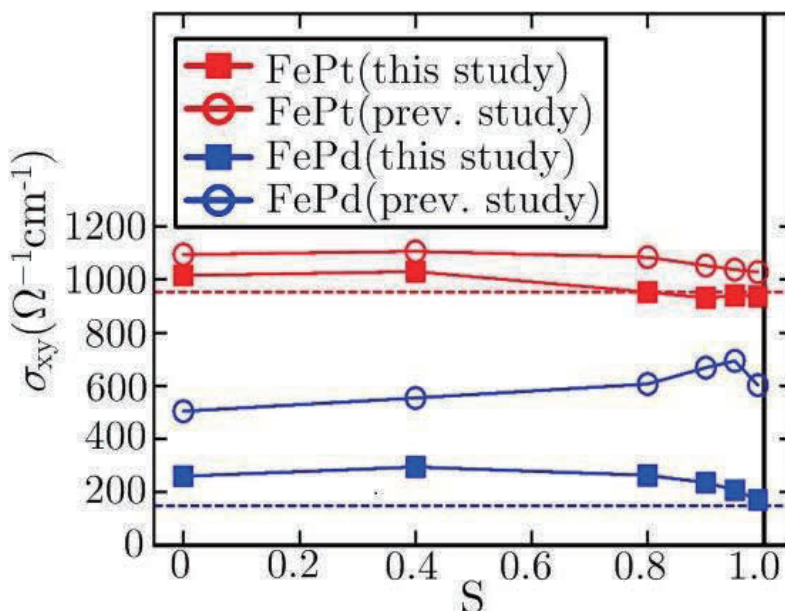


図1: FePt , FePd 合金について, 本研究手法と先行研究手法でそれぞれ内因性機構の σ_{xy} を計算した結果。点線は散乱を無視した場合の内因性 σ_{xy} の値を示す。

この結果から、本計算手法では、先行研究に比べてより適切に各機構を評価できていることを確認した。

図 2 には、 $\text{Ni}(1-x)\text{Z}(x)$ ($\text{Z}=\text{Co}, \text{Fe}, \text{Mn}$) 合金について合金の価電子数を変化させた場合の内因性・外因性機構の依存性を示す。

まず内因性機構について見ると、3つの合金について、価電子数 Z を変化させた際の振る舞いはほぼ同一となることが分かった。これは、内因性機構が、電子の散乱にはほとんど依らず、静的なバンド構造で主に値が決定されるという性質を持っていることから説明される。3つの合金は構成原子の原子番号が近接していることもあり、価電子数が同一の場合バンド構造は類似である。そのため合金の種類に依らず、内因性 σ_{xy} はほぼ等しい値となったと考えられる。

次に外因性機構の結果に目を移してみる。外因性機構は、一般に電子の緩和時間 τ に比例する項 (τ^1) と τ に依らない項 (τ^0) の和として得られる。本研究ではこの二つの寄与を分離できるため、下の図ではそれぞれの結果を個別に示す。結果から、特に τ に依らない寄与について、NiCo, NiFe では値が大きいのにに対し NiMn では値が小さく、合金間の差が大きいことが分かる。このように内因性・外因性機構で合金間の σ_{xy} の関係は大きく変化していることが明らかとなった。

次に、差の大きい τ^0 項についてその起源を考察した。 τ^0 項に関してモデル計算を行った結果、電子の異なる軌道間の緩和時間 τ の差に強く依存することが判明した。この依存性を踏まえ、各合金の τ を軌道別に出力した結果、NiCo, NiFe ではスピン間の τ の差が大きいのにに対し、NiMn では τ の差が小さく、この違いが τ^0 項の差として現れたと考えられることが分かった。実験的にはこの τ の差はスピン別の電導度の差として観測が可能である。また、 τ の差を生み出す電子状態について考察した結果、フェルミエネルギー上の DOS が NiCo, NiFe ではスピン間で差が大きいのにに対し、NiMn では差が小さいことが起因しており、DOS の差によって、EF 上の伝導電子の散乱確率が変化することが τ の差につながることが分かった。

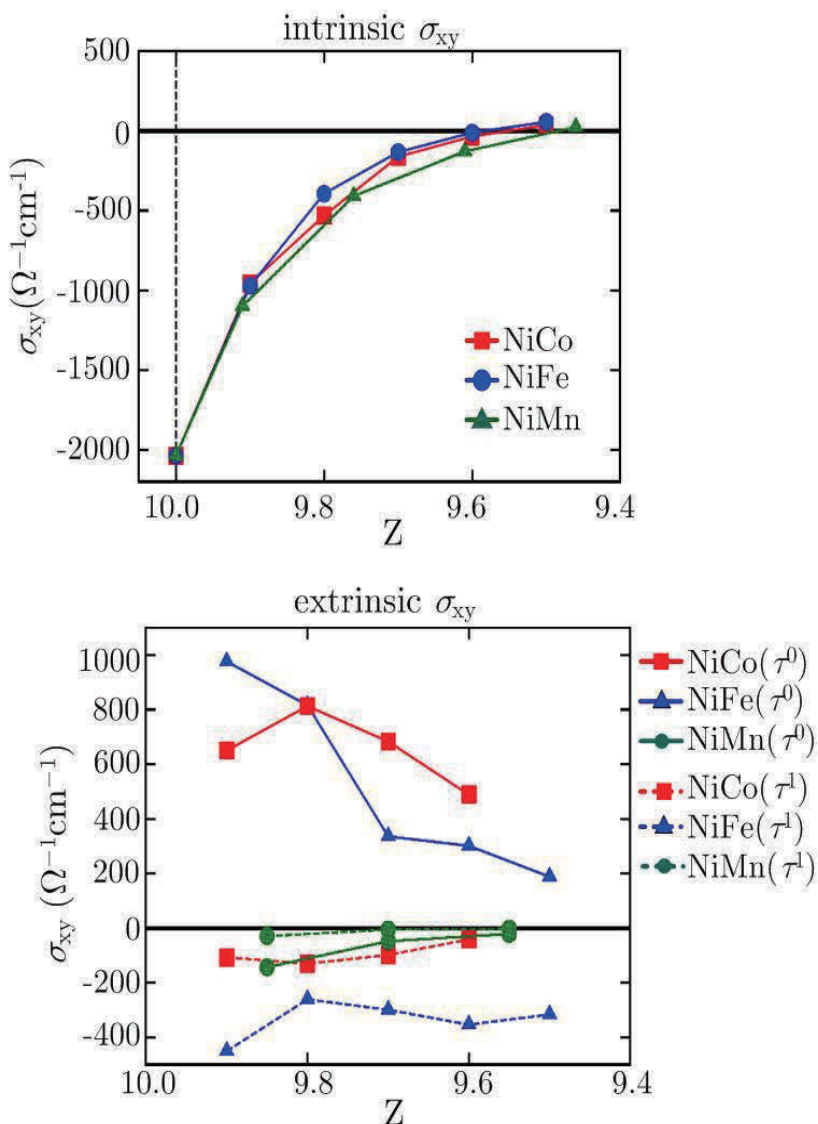


図 2 : $\text{Ni}(1-x)\text{Z}(x)$ ($\text{Z}=\text{Co}, \text{Fe}, \text{Mn}$) 合金における内因性・外因性 σ_{xy} の、合金の価電子数 Z に関する依存性

図3には、FePt・FePd合金について合金の規則度 S を変化させた際の内因性・外因性機構の依存性を示す。

各機構の S 依存性を見ると、両合金で共通して、 π に依らないとされる内因性機構並びに外因性機構の τ_0 項は S に関してほぼ一定傾向を示す。対して、 π に比例すると考えられる外因性機構の τ_1 項は、散乱が少なく τ が増大する $S=1$ 近傍において絶対値が大きく増大する振る舞いを示す。結果として、各機構の S 依存性はそれぞれの τ 依存性から説明されることが分かった。

次に各合金について主要な寄与を示す機構と、その起源を考察した。一般に合金の規則度は $S<0.9$ であることから、その範囲について言及する。まず、FePtについては、 $S<0.9$ では内因性機構の寄与が非常に大きいため、FePtのAHEは内因性機構の特性に対応し、電子の散乱にほとんど依らないと考えられることが分かった。この大きな内因性機構の値は、FePt中のPt原子がもつ強いスピン軌道相互作用に起因していると考えられる。

一方、FePd合金は、内因性機構よりも外因性機構 τ_0 項の寄与が強く、FePt合金と異なり散乱効果に起因した機構 σ_{xy} が大きく左右されていることが分かった。この大きな τ_0 項の値は、図2のNi系合金同様に、電子の異なる軌道間の τ の差に起因している。この τ の差は、FePd合金においてフェルミエネルギー上の電子の軌道間の散乱ポテンシャルに差が生じていることに起因していると考えられる。

このようにFePt・FePdのような類似の合金でもわずかな特性の差から、AHEの主要な起源は異なることが判明した。

本研究の成果として、1：物質の σ_{xy} に寄与する各機構の評価を、物質の電子状態を用い、微視的観点から第一原理的に評価する手法を考案したこと、2：各機構に寄与する物質の特性を微視的に明らかにしたことが挙げられる。これらの成果により、磁性材料における σ_{xy} に関して、理解が一層深まることが期待される。

- [1] S. Lowitzer et. al., PRL, **105**, 266604 (2010)
- [2] A. Crépieux et. al., PRB, **64**, 014416 (2001)
- [3] N. A. Sinitsyn et. al., PRB, **75**, 045315 (2007)

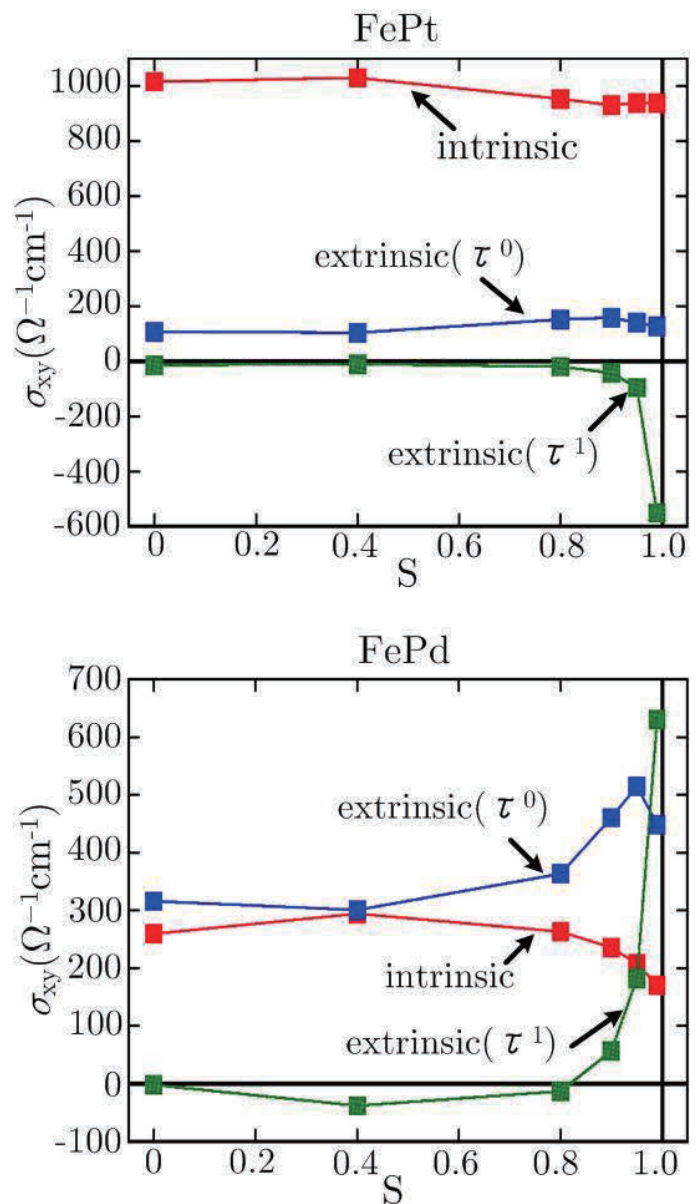


図3：FePt・FePd合金における内因性・外因性 σ_{xy} の、結晶の規則度 S に関する依存性

論文審査結果の要旨

近年磁気工学分野で注目を浴びているスピンオービトロニクスは、電子の運動がスピン軌道相互作用 (SOI) を介してスピン自由度と相関を持つことに着目し、電場によりスピン自由度の制御を目指す分野である。異常ホール効果 (AHE) は、SOI に起因した、電場によって駆動されるスピン依存の伝導現象であり、上のスピンオービトロニクス分野において最も古くから知られている現象の一つである。その解明は、学術的興味と共に、近年ではスピンオービトロニクスのような応用面からも注目されている。応用の観点では、特に強磁性金属中の AHE の理解が欠かせない。

しかしながら、現在においても強磁性金属の AHE は十分な知見が得られていない現状がある。その要因として、物質中における AHE が、電子の散乱に起因しない内因性機構と散乱効果に起因する外因性機構の和として得られていることが挙げられる。このため、物質の AHE の理解においては、得られた異常ホール伝導度(σ_{xy})がどの機構から主に生じているかを明らかにすることが重要である。しかし、既存の実験・理論研究でこれらの機構を分離して微視的観点から評価した例はほとんどないのが現状である。

以上の背景から本研究では、第一原理計算を用いて物質中における AHE の複数の機構を微視的観点から分離する枠組みを構築し、磁性金属材料の σ_{xy} における主要な機構を明らかにすること、またその機構に寄与する材料の特性を明らかにすることを目的とし、研究を行った。研究対象としては、Ni 系合金として、NiFe, NiCo, NiMn 合金、また FePt, FePd 合金を扱った。

結果として、NiCo, NiFe, NiMn 合金において各機構の分離を行ったところ、NiMn 合金では σ_{xy} は主に内因性機構から生じているが、NiFe, NiCo 合金では内因性機構と共に、外因性機構が重要な寄与をすることが明らかとなった。また、内因性機構の寄与は 3 つの合金でほぼ同程度であり、各合金の σ_{xy} の差は外因性機構から生じていることが分かった。

次に各合金の機構に寄与する物質の特性を調べたところ、3 つの合金で同程度の内因性機構には主に合金の価電子数が寄与していることが分かった。3 つの合金の価電子数はほぼ等しいため、内因性機構の寄与は同程度になったと考えられる。また、NiFe, NiCo で見られた大きな外因性機構は、スキュー散乱機構とサイドジャンプ機構の両方に起因している。このうち、スキュー散乱機構の寄与は二つの合金の高い縦伝導度の影響が大きい。また、サイドジャンプ機構の寄与には、二つの合金の電子について \uparrow スピン状態と \downarrow スピン状態で緩和時間が大きく異なることが起源となっていることが分かった。

また、FePt, FePd 合金についても FePt では内因性機構が主要であるのに対し、FePd 合金では外因性機構の寄与が大きいことを明らかとした。

本研究の成果として、1: 物質の σ_{xy} に寄与する各機構の評価を、物質の電子状態を用い、微視的観点から第一原理的に評価する手法を考案したこと、2: 各機構に寄与する物質の特性を微視的に明らかにしたことが挙げられる。これらの成果により、磁性材料における σ_{xy} に関して、理解が一層深まることが期待される。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。