

金属磁性体の有限温度磁気特性の定量評価を目指して — 交換スティッフネス定数の定量評価の試み —

[1] 要旨

磁性材料の巨視的特性の評価を行うために、ランダウ・リフシッツ・ギルバート(LLG)方程式で用いる交換スティッフネス定数 $A(T)$ を第一原理計算で求めた。本研究では、実用材として代表的な $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ (パーマロイ) と FePt を取り上げたが、両系ともに室温における $A(T)$ の計算結果は測定値をよく再現しており、 FePt については $A(T)$ に大きな方位依存性が存在することなど興味深い結果を示している。

[2] 本文

理論計算により物性定数を定量的に再現し、さらには新物質の予言や提案をすることは物性物理学の悲願の一つであろう。

電子論に基づく第一原理計算は、操作可能なパラメータなしに物質の個別性を定量的に表現できる強力な処方箋であり、計算機の発展に伴って 1980 年代から材料やデバイスの開発への応用の期待が寄せられてきた。しかしながら、実用材料の多くは完全結晶からほど遠く、欠陥や粒界、歪などを多く含んでおり、多くの機能材料はこれらをうまく利用することで所望の特性が実現されている。現時点で、これら実用材の特性を第一原理計算だけで記述するのは困難であり、秩序変数(磁化や超伝導ギャップ)のスティッフネス(剛性)あるいは特性長に応じた粗視化が求められる。磁性ではランダウ・リフシッツ・ギルバート(LLG)方程式を用いることにより、複雑な環境下での秩序変数の巨視的な挙動の可視化が可能となる。

LLG 方程式を構成する基本的パラメータは交換スティッフネス定数 (A) と磁気異方性定数 (K)、およびギルバート緩和定数 (α) である。ここで問題になるのは多くの材料特性の関心は室温あるいはそれ以上の高温領域にあることである。遍歴電子磁性体の有限温度磁性は古くから磁性物理学の重要テーマであり、我が国で大きく発展してきた分野である。一般の金属強磁性に対しては守谷亨氏の統一理論に代表されるような汎関数積分法が強力な処方箋となる。1970 年代にハバード模型を用いたモデル計算で汎関数積分法の有用性が示され、1980 年代になって第一原理計算による汎関数積分法が開拓された。実際の計算では、単一サイト近似や静的断熱近似など多くの仮定や近似が用いられているが、本手法はエネルギー消費の少ないスピンの横揺らぎ成分を扱っているため、縦揺らぎのみを扱う平均場ストナー近似と比べるとキュリー温度の予想などに関して大幅な改善が認められる。

東北大学大学院工学研究科応用物理学専攻の研究グループは、これらの手法を磁性体の電気伝導度や LLG 方程式における磁気定数など物理量の第一原理計算手法に発展させるべく取り組んできた。本研究もその一環として行われたものであり、有限温度における交換スティッフネス定数 A の定量評価に関するものである。交換スティッフネス定数とはスピン間の交換相互作用 ($J_{i,j}$) に起因して生じる規則的なスピン配列(例えば強磁性配列)の堅固さ(硬さ)を表す量で、大きい物質ほどキュリー温度は高く磁区や磁壁幅のスケールも大きくなる。 A を $J_{i,j}$ から求めることも可能であるが、全てのスピン間の $J_{i,j}$ の評価が必要になるので効率的でない。本研究での $A(T)$ の評価には、スピン揺らぎの存在下で波数 \mathbf{q} で特徴付けられるスパイラル磁気構造を発生させ、そのときの自由エネルギーの増分(磁気構造の硬さに対応)から求めるという立場をとっている。この方法による A は、 $J_{i,j}$ から求める方法より遥かに直截的であり、且つ粗視化の概念に適合している。

本研究で対象とした物質は
実用磁性材料の中でも最もポ
ピュラーなパーマロイ($\text{Fe}_{0.2}\text{Ni}_{0.8}$
不規則合金)と $L1_0$ 型 FePt (規
則合金)である。電子状態の計
算には強結合-線形マフィンテ
イン軌道(TB-LMTO)法を用い
ている。図1にパーマロイの
 $A(T)$ の計算結果を示す。挿入
図は Fe と Ni の局所磁気モー
メントの温度依存性の計算結
果である。それぞれの原子の
組成比(1:4)を考慮した平均値
は $T = 300 \text{ K}$ (室温)で約1ボー
ア磁子(μ_B)であり、測定値をよ
く再現している。キュリー温度
は約 550 K であり、実測値(670
K)より若干低く出ている。得ら

れた $A(T)$ は LLG 方程式で経験的に用いられる値(数 $\text{meV}/\text{\AA} \sim 10\text{meV}/\text{\AA}$)の範囲にあり、室温での $A(T)$ は測定値とよく一致しているように見える。しかし、その温度依存性は、スピン系のモデルを用いてマグノン-マグノン散乱から求められた温度依存性($T^{5/2}$ で減少)とは異なっている。これが遍歴電子系の特徴を反映したものか近似の程度によるものかについては今後検討の余地がある。FePt の $A(T)$ についても同様の温度依存性が示され、室温での $A(T)$ は定量レベルで実測値とのよい一致が認められている。この系については構造の異方性を反映して、 $A(T)$ にも大きな方位依存性が存在することなど興味深い結果が示された。以上の成果は、JPSJ の 2024 年 5 月号に掲載された。

物理学の発展の下で長年にわたって培われてきた磁性理論が、このような第一原理計算を通してその地平を広げ、将来、実用材開発に大きく貢献することを期待したい。

原論文(2024年4月16日公開済)

Evaluation of the Exchange Stiffness Constants of Itinerant Magnets at Finite Temperatures from the First-Principles Calculations

A. Sakuma, J. Phys. Soc. Jpn. **93**, 054705 (2024).

<情報提供:佐久間 昭正(東北大学大学院工学研究科)>

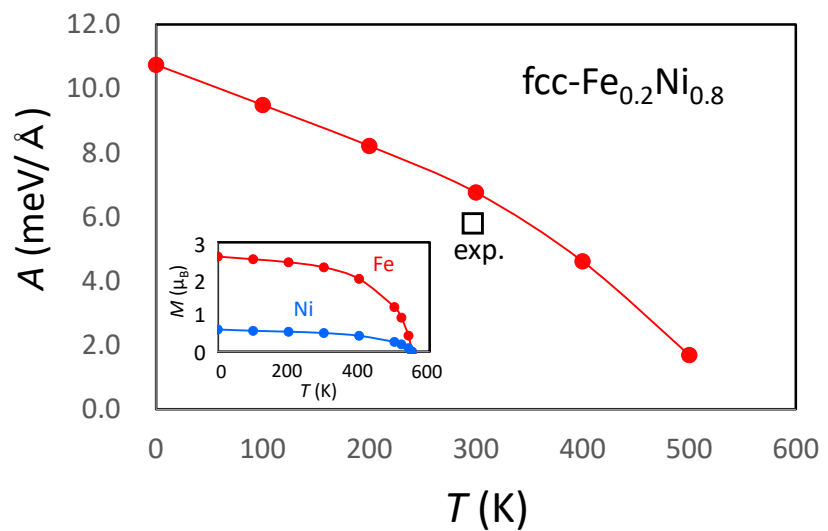


図1 パーマロイ ($\text{Fe}_{0.2}\text{Ni}_{0.8}$) の交換スティッフネス定数 $A(T)$ の温度依存性の計算結果。□は実験結果。挿入図は Fe と Ni の局所磁気モーメントの温度依存性の計算結果。