The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Materials design of half-metallic Heusler alloys based on spin-wave dispersion calculated by the quasi-particle self-consistent GW method
Author(s)	奥村, 晴紀
Citation	大阪大学, 2020, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/76541
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　　奥村　晴紀　　）	
論文題名	Materials design of half-metallic Heusler alloys based on spin-wave dispersion calculated by the quasi-particle self-consistent GW method （QSGW法によるスピン波分散関係の第一原理計算とハーフメタリックホイスラー合金のマテリアルデザイン）

論文内容の要旨

磁気メモリや磁気センサなどに応用されるトンネル磁気抵抗効果(TMR)がある。その性能指数であるTMR比が室温で減少する原因のひとつとして本研究では磁気励起状態に注目し、磁気励起を抑制するため次の3つの条件に基づいて材料を探索した。(1)ハーフメタリックギャップが大きくフェルミレベルがギャップ中央付近に位置すること、(2)Stonerギャップが大きいこと、(3)スピン波スティフネス定数が大きいこと。これらの物性値を予測するため、ホイスラー合金の電子状態とスピン波分散関係について第一原理計算に基づいて計算した。磁性材料の基底状態は、ecaljパッケージを用いて、quasi-particle self-consistent GW (QSGW)法により決定した。得られたバンド構造を最局在ワニエ関数でモデル化し、線形応答理論に基づき動的帯磁率を計算するためのコード開発をおこなった。理論と計算手法については本論文の2章で説明した。計算結果は以下の３章から６章で構成され、7章で本論文内容を総括した。

３章では、開発したコードの有効性を確認するために、典型的な強磁性金属であるbcc Fe、hcp Co、fcc Co、fcc Ni、およびCsCl型のFeCoについて、スピン波の分散関係とスピン波スティフネス定数を計算した。Fe、Co、Niにおいてスティフネス定数は実験値を再現する。しかし、先行研究で言及されているように、QSGW法が与える磁気モーメントはNiやCoで実験値を過大評価する傾向にあり、QSGW法改良の１つの課題となっている。また、FeCoについて磁気モーメントは一致するが、スティフネス定数は過小評価する傾向にあることを確認した。

４章では、複雑な磁気的相互作用を持つ系として強磁性金属ホイスラー合金Cu_2MnAl、Ni_2MnSn、Pd_2MnSnについて計算をおこなった。従来の局所密度近似(LDA)法と比較して、QSGW法のスティフネス定数は小さくなる傾向にある。Cu_2MnAlについては、実験のスティフネス定数はLDA法とQSGW法の間の値をとる。QSGW法が実験値を過小評価する理由は、スピン波励起に支配的に寄与する局在したMn3d軌道を、計算では光電子分光の測定結果より深いエネルギー位置に予測するためである。一方でNi_2MnSnとPd_2MnSnにおいては、計算されたMn3dのエネルギーは測定値を再現し、その結果スティフネス定数は実験値と一致する。しかし、Niの場合同様に、Ni_2MnSnにおける遍歴的なNi3dについて再現性は悪く、磁気モーメントを過大評価する。

５章では、典型的なハーフメタルであるCo_2MnSiとハーフメタルに近いCo_2FeSiについて計算をおこなった。*GW*近似によりMn3dおよびFe3dの電子相関の効果が正しく取り込まれ、QSGW法の磁気モーメントは実験値を再現する。それに伴い、ハーフメタリックギャップもLDA法に比べて大きくなり、半導体や絶縁体のバンドギャップエネルギーの場合と同様の傾向が得られた。スティフネス定数について、Co_2MnSiで実験値を再現するが、Co_2FeSiでは過小評価する。Co_2FeSiではスティフネス定数が小さいためにスピン波励起が起こりやすくなる結果、電子-マグノン散乱による非準粒子状態が少数スピンの状態密度のフェルミレベル直上に生成しやすくなると考えられる。この寄与を考慮すると、QSGW法の計算と実験から予想される状態密度の違いが説明できると考えられる。また、$Co_2FeAl_xSi_{1-x}$, $Co_2Mn_xFe_{1-x}Si$について、荷電子数が多くなるほどスティフネス定数は小さくなる。この傾向は、報告されている磁化の温度依存性から計算されたスティフネス定数の傾向と一致する。

６章では、Co_2MnSiのハーフメタリックギャップ、Stonerギャップ、スティフネス定数と同程度以上の値をもつ材料を探すため、理論的にハーフメタルであると予想されている逆ホイスラー合金、四元系ホイスラー合金について計算をおこなった。それらのうち本論文で提案するCoFeTiSb、CoVZrAl、CoVTiAlは、フェルミレベルでのスピン分極率の温度依存性が小さい材料の候補だと考えられる。ただし、CoVZrAl、CoVTiAlは強磁性半導体であるため、ホールドーピングによって伝導性を与えることで、スピントロニクス分野への応用が期待できると考えられる。

本論文では、コード開発した手法がいくつかの強磁性金属のスピン波スティフネス定数の予測において十分有効であることを確認し、Co_2MnSiに比べて室温で磁気励起が抑制される材料の探索に応用した。QSGW法のバンド構造からスピン波を計算する本研究の手法は、スピントロニクス分野の材料を設計するために応用できると考えられる。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　奥村　晴紀　）			
論文審査担当者		（職）	氏　名
	主 査	准教授	佐藤　和則
	副 査	教授	藤原　康文
	副 査	教授	中谷　亮一
	副 査	教授	荒木　秀樹

論文審査の結果の要旨

スピントロニクスは電子のスピンの自由度を積極的に利用する次世代エレクトロニクスの一つであり、高速化・高集積化・省エネルギー化の観点から、その実現に向けて様々な研究がなされている。基礎となる物理現象の一つに、磁気メモリや磁気センサなどに応用されるトンネル磁気抵抗効果(TMR)がある。その性能指数である TMR 比は、ハーフメタル材料では理想的には絶対 0 度で無限大となるものであるが、実験的には室温で大きく減少することが知られており、実用的な材料の開発が求められている。本研究では、ハーフメタル材料における TMR 比の温度依存性の起源として磁気励起に注目し、ハーフメタル材料において磁気励起を抑制する条件として、 (1)ハーフメタリックギャップが大きくフェルミレベルがギャップ中央付近に位置すること、(2)Stoner ギャップが大きいこと、(3)スピン波スティフネス定数が大きいことを挙げ材料探索を行っている。これらの物性値の予測には、quasi-particle self-consistent GW (QSGW)法による第一原理計算コード ecalj パッケージが用いられている。得られたバンド構造を最局在ワニエ関数でモデル化し、動的帯磁率およびスピン波分散関係を、線形応答理論に基づき計算するコードが本研究で開発されている。開発した方法をホイスラー合金を含む種々の磁性体について適用し、以下の知見を得ている。

(a) 典型的な強磁性金属である bcc Fe、hcp Co、fcc Co、fcc Ni および CsCl 型の FeCo について、スピン波の計算を行っている。スピン波スティフネス定数が実験値をよく再現することから、本論文で開発した方法の有効性を確認している。

(b) 強磁性ホイスラー合金 Cu_2MnAl、Ni_2MnSn、Pd_2MnSn について計算を行っている。従来の局所密度近似(LDA)法と比較して QSGW 法はスティフネス定数を小さく予測し、その結果、実験との一致が良くなることを明らかにしている。得られた電子状態を光電子分光の実験結果と比較し、Mn3d 軌道がスピン波励起に支配的に寄与していることを指摘している。

(c) ハーフメタリックホイスラー合金 Co_2MnSi とハーフメタルに近い Co_2FeSi について計算を行い、QSGW 法では Mn3d および Fe3d の電子相関が正しく取り込まれ、磁気モーメントが実験値を再現することを明らかにしている。それに伴い、スティフネス定数について Co_2MnSi で実験値をよく再現する計算値を得ている。一方、Co_2FeSi ではスティフネス定数を過小評価しており、本研究では取り入れられていない規則度の影響を指摘している。

(d) 理論的に提案されているハーフメタル物質である逆ホイスラー合金、四元系ホイスラー合金について計算を行い、CoFeTiSb、CoVZrAl、CoVTiAl を、フェルミレベルでのスピン分極率の温度依存性が小さい材料の候補として提案している。CoVZrAl、CoVTiAl については強磁性半導体となることを予測しており、正孔添加の必要性を指摘している。

以上のように、本論文は磁気励起状態の第一原理コードを独自に開発し、ハーフメタル材料を含む様々な強磁性金属のスピン波分散関係の予測に適用して、スピントロニクス材料の設計に応用しており、第一原理計算の分野だけでなく材料設計の分野にも寄与するところが大きい。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。