

白金表面上鉄の電子状態と磁気異方性

辻川雅人, 小田竜樹

金沢大学自然科学研究科

tujikawa@cphys.s.kanazawa-u.ac.jp

概要: 経験的パラメータを用いずに物質の電子状態を計算できる密度汎関数理論に基づく第一原理計算を用いて、白金表面上の鉄の電子状態と磁気異方性について調べた。白金(001)表面を鉄で覆った系では、白金原子でキャップすることにより大きな面直方向の磁気異方性を示す結果が得られた。白金微斜面段差端の鉄鎖についても磁気異方性エネルギーの見積もりを行った。大型並列計算機を駆使して、ナノスケールの微細構造をもつ磁性表面の微小な磁気異方性エネルギーの見積もりに成功した。

1 はじめに

鉄白金系は面心立方格子型(L1₀型)の規則合金が非常に強い磁気異方性を示すことから、次世代の磁気記録メディアの磁性材料やスピントロニクスデバイス実現材料として注目を集めている。一方、Gambardellaらによって分子線エピタキシャル成長を用いた、白金(997)微斜面ステップ端に自己組織化したコバルト一原子鎖の作製と磁性測定が行われた[1]。このように、表面上にナノスケールの微細構造を作成する技術の進歩により、鉄白金系においても白金表面上の鉄鎖[2]や鉄白金薄膜[3]の作成がなされている。

本研究では、経験的パラメータを用いない第一原理電子状態計算を用いて白金表面上の鉄について磁気異方性エネルギー(MAE)を見積もるとともに、大きな磁気異方性を持つ構造の探索を行った[4,5]。現在、原子スケールでの構造と磁気異方性の関係についての理解が進んでいる。

2 手法

計算には、密度汎関数理論に局所密度近似を用いた、平面波基底の第一原理分子動力学コード[6]を使用している。MAEを見積もるためには、磁気異方性の主な起源となっているスピン軌道相互作用を導入することが必要であり、この相互作用は相対論的擬ポテンシャルを用いることにより自己無撞着に取り入れられている。ノンコリニア磁性のスピノル型波動関数を導入するため、コリニア磁性計算に比べ計算時間が6~10倍程度となっており大きな計算資源が必要となっている。

MAEは磁化方向を変えたときの全エネルギーの差として見積っている。擬ポテンシャル法を用いて表面緩和も比較的容易に行えることから、表

面緩和の影響についても調べているのが、本研究の特徴である。計算は、白金(111)面を鉄で覆った系や鉄一原子鎖を一行おきに配置した系について調べた。また、白金(001)面に鉄を一原子層積層させた系や鉄層の上に白金層を積層させた系についても調べた。白金表面上の鉄鎖についても、白金(664)微斜面上の鉄鎖について、磁気異方性を見積もりを行った。

使用した計算機は、日立SR11000モデルJ(理論ピーク性能121.6GFLOPS/ノード)である。今回計算を行った中で最も系の大きな白金(664)微斜面上の鉄鎖の計算(単位胞当たり22原子)について詳細を示す。平面波のカットオフエネルギーは波動関数について30Ry、電子密度について300Ryとした。ブリュアンゾーン内の積分は $6 \times 32 \times 1$ (192点)のk点メッシュで計算を実行した。MPIによるk点並列計算を行っており、6ノード(96CPU)を用いた計算で理論ピーク性能の17%程度の性能が得られている。1つのMAEを見積もるのに200時間の計算時間を必要とした。

3 結果

白金(111)面上に鉄一原子層を配置した系では、面内の磁化容易軸を持つ結果が得られた。白金(111)面上鉄鎖の系では、磁化容易軸は鎖ののびた方向であり、MAEの絶対値は2.31meV/Feであった。また、表面緩和を行うと、MAEの絶対値が緩和前の2倍程度まで増大しており、磁気異方性の計算において表面緩和の影響を取り入れることの重要性があきらかになった。

白金(001)面上に鉄を一原子層積層させた系では、図1に示すように理論計算から見積もったMAEの値は非常に小さなものであった。しかし、鉄の

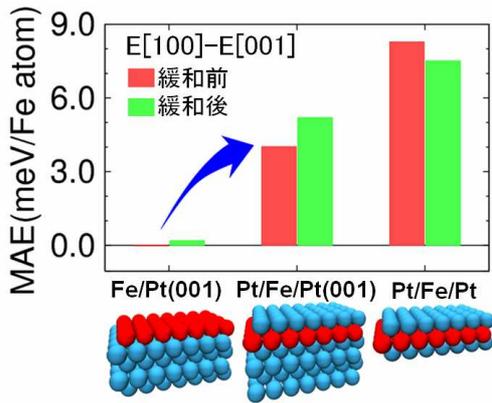


図1：白金(001)面系のモデルと磁気異方性エネルギー (MAE)

層を白金層でキャップすることで非常に大きな面直磁気異方性を示すという結果が得られた。これは、キャップすることで、フェルミレベル付近にあった鉄の $d(xz)$ および $d(yz)$ 軌道が、白金の軌道と混成することにより、フェルミレベル以下に押し下げられることが原因である。この鉄単層からなる鉄白金薄膜において垂直磁気異方性を示すという結果は、今田らによる実験結果[3]ともよく一致している。

白金(664)微斜面段差端の鉄鎖の系については、磁化容易軸は(111)面上の鉄鎖とは異なり、鎖に垂直な方向であることがわかった。Repetto らによる実験からは、磁化容易軸は、鉄鎖に垂直で、テラスに垂直な方向から段差を昇る方向に 80 度傾いた方向であると測定されている[2]。図2に全エネルギーの磁化方向依存性の計算結果を示す。ここで、 ϕ は yz 平面において z 軸から y 軸方向へ測った角度である。実線は我々の計算結果であり、破線と点線は他グループにより全電子法で得られた結果である。磁気異方性定数の値 1.19meV/Fe は、全電子計算による結果 1.51meV/Fe [7] や 1.27meV/Fe [8] とよく一致している。また、磁化容易軸の方向 $\phi = -50^\circ$ は、全電子計算による結果、 $\phi = -28^\circ$ [7] と -80° [8] の間にある。現在、表面緩和を取り入れた場合の見積もりを行っている。

白金(111)面上と(664)微斜面上で鉄鎖の磁気異方性が異なっている原因について、局所状態密度やバンド構造から解析を行った結果、白金(664)微斜面段差端の鉄鎖では、段差端に存在する白金と鉄の軌道混成により、磁化容易軸が白金(111)面上とは大きく変化することがわかった。

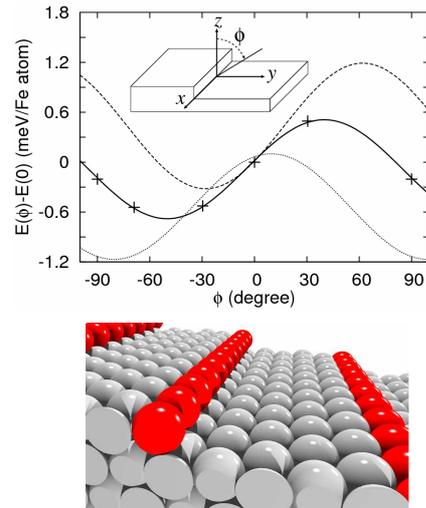


図2：白金(664)微斜面上鉄鎖の系における全エネルギーの磁化方向依存性

4 まとめ

白金表面上の鉄原子について、磁気異方性エネルギーの見積もりを行った。白金(111)面上に鉄原子を配置した系では、磁化容易軸は面内であった。白金(001)面上に鉄原子を積層させた系では、白金原子で鉄原子層を覆うことにより大きな垂直磁気異方性を示すことが明らかとなった。白金微斜面段差端の鉄鎖については、磁化容易軸方向や MAE の値が白金(111)面上の鉄鎖とは全く異なることがわかった。このように、表面の原子スケールでの構造の違いにより、磁気異方性を変化されることの可能性が新しく示された。

今後、表面上の島状構造などのより複雑な磁性表面の計算を現実的な計算時間内で行うために、ハイブリッド並列化等による並列化効率の向上を目指すことや、超並列計算機の使用も必要となる。

参考文献

- [1] P. Gambardella et al., Science **300**, 1130 (2003).
- [2] D. Repetto et al., Phys. Rev. B **74**, 054408 (2006).
- [3] S. Imada, A. Yamasaki, S. Suga, T. Shima, and K. Takanashi, Appl. Phys. Lett. **90**, 132507 (2007).
- [4] M. Tsujikawa, A. Hosokawa, and T. Oda, J. Phys.: Condens. Matter **19**, 365208 (2007); **19**, 479002 (2007).
- [5] M. Tsujikawa, A. Hosokawa, and T. Oda, Phys. Rev. B **77**, 054413 (2008).
- [6] T. Oda and A. Hosokawa, Phys. Rev. B **72**, 224428 (2005).
- [7] A. B. Shick et al., J. Magn. Magn. Mater. **290-291**, 257 (2005).
- [8] M. Komelj et al., Phys. Rev. B **73**, 134428 (2006).