

# 強い垂直磁化表面の磁気異方性電界効果に関する第一原理計算

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: 磁性を自由自在に電界制御することはスピントロニクス分野のブレークスルーである。経験的パラメータを用いずに物質の電子状態を計算する第一原理計算により、強い垂直磁化をもつ鉄白金表面の磁気異方性電界効果を調べた。この研究では電界印加のもとでポアソン方程式と量子力学方程式を自己無撞着に解くことにより系の全エネルギーを計算し、電界による磁気異方性エネルギーの変化を見積もることに成功した。

## 1 はじめに

次世代超高密度磁気記録メディアの開発において、1ビット当りの記録領域サイズの減少に伴う、熱揺らぎによるデータ損失や磁界のみによる磁化反転の限界などが深刻な問題である。熱揺らぎによるデータ損失は大きな磁気異方性(保磁力)を持つ材料を用いることで防ぐことができると期待されるが、反面、磁化反転はより困難なものとなる。メディアの高密度化を進める上で、磁界による磁化反転に変わるより効率的な磁化反転技術の開発が重要となっている。近年、希薄磁性半導体(Ga, Mn)Asにおいて電界による保磁力制御[1]が報告され、電界のみ、または電界と磁界や電流の併用による磁化反転への応用が期待されている。希薄磁性半導体だけでなく、常磁性—強磁性転移温度が室温以上である鉄白金 FePt といった金属薄膜[2]やMgO/Fe/Au(001)といった接合系[3]においても磁気異方性エネルギー(MAE)の電界制御が盛んに研究されている。こういった技術は低消費電力化にも大いに貢献するものであり、大規模計算機シミュレーションがスピントロニクス分野に貢献できるものである。本研究では、スピントロニクス材料として注目を集めている FePt の表面系について、電界による MAE の変化量の見積もりを行った[4]。より低電界にてより大きく MAE を変化させることが重要となる。また、MAE が変化するメカニズムを電子状態から詳細に議論した。

## 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[5]を使用している。MAE を見積もるためには、磁気異方性の起源であるスピン軌道相互作用を導入す

ることが必要であり、これ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ン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。

電界は大谷・杉野らにより開発された有効遮蔽体(ESM)法を用いて扱っている[6]。この手法では、電子を加え帯電したスラブについて、ある境界条件(今回は図1(a)に示すように計算セルの端の一方に完全導体板(ESM)が置かれているという条件)の下で求めたグリーン関数を用いて静電ポテンシャルを得ることで、ポアソン方程式を解いている。ESM法を用いることで図1(b)に示すように一方の表面にのみ電界が印加された状態を計算することが可能となり、原子数と計算セルサイズの減少により、計算量が大幅に軽減されている。

計算を行ったのは、白金4層上の鉄単層を白金単層で覆った系(Pt/Fe/Pt(001))と白金キャップ層を除いた系(Fe/Pt(001))についてである。また、Pt/Fe/Pt(001)表面に酸化マグネシウム5層を接合した系についても計算を行っている。

計算は、日立SR11000モデルJ(理論ピーク性能121.6GFLOPS/ノード)を用いて行った。最もシステムサイズの大きな酸化マグネシウムとの接合系にて、1つのMAEを見積もるのに50時間程度の計算時間を要した。このとき、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、ブリュアンゾーン内の積分は $24 \times 24 \times 1$ (576点)のk点メッシュで計算を行った。また、MPIによるk点並列計算を行い、6ノード(96CPU)を用いて計算を実行した。

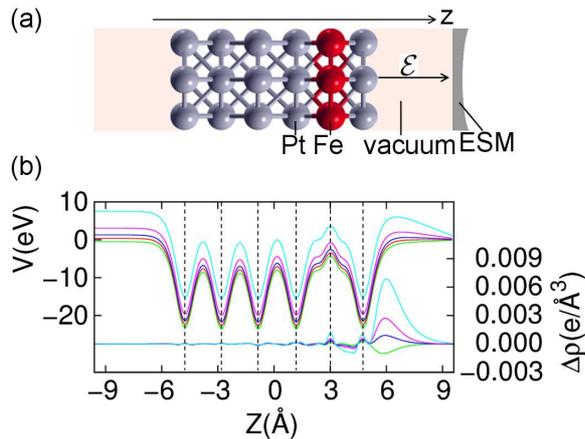


図 1 : (a)Pt/Fe/Pt(001) 表面の計算モデル。(b)Pt/Fe/Pt(001) 表面における静電ポテンシャルの面内平均(上から  $\epsilon = -1.97, -0.71, -0.22, 0.00, 0.24\text{V}/\text{\AA}$ )と電界を印加したときとしていないときの電子密度の面内平均の差。縦点線は各原子層の位置。

### 3 結果

Pt/Fe/Pt(001) 表面において電界ゼロでの磁気異方性エネルギーは  $11\text{mJ}/\text{m}^2$  と得られ、このような大きな垂直磁気異方性を持つ系に対する磁気異方性の電界効果を第一原理計算から調べたのは本研究が最初である。調べた電界範囲内において、磁気異方性エネルギーは図 2 に示すように電界に対して線形に変化し、表面内向き(負)の電界に対して減少する。これは Weisheit らによる FePt 薄膜における実験[2]で得られている傾向と一致する。電界に対する磁気異方性エネルギー変化量の割合は、Pt/Fe/Pt(001) 薄膜において  $72\text{fJ}/\text{Vm}$  と得られ、以前に行われた計算で得られている鉄薄膜での値 ( $19\text{fJ}/\text{Vm}$ ) [7] や鉄単層での値 (約  $32\text{fJ}/\text{Vm}$ ) [8] に比べ数倍程度の大きな値であった。スピン密度分布やエネルギー状態密度、電子状態(バンド)構造を詳細に解析したところ、内向きの電界に対して鉄 3d 軌道の少数スピン状態の中で  $xz, yz$  軌道から  $3z^2-r^2, x^2-y^2$  軌道へ電子の詰め替えが起こっていることが明らかとなった。この鉄 3d 軌道内の電子の詰め替えにより、非占有状態の  $xz, yz$  軌道と占有状態の  $3z^2-r^2, x^2-y^2$  軌道との間から、垂直磁気異方性に不利な寄与が増大することで磁気異方性エネルギーが減少すると説明される。

実験では金属表面に誘電体が接しており、真空中に比べ小さな電界で金属表面に電子を誘起することができているはずである。実験と直接比較可能な結果を得るために誘電体との接合系について

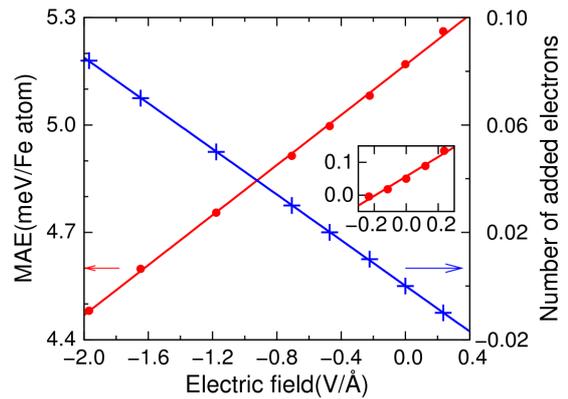


図 2 : Pt/Fe/Pt(001) 表面における磁気異方性エネルギーの電界依存性(丸印・赤線)と電界と加えた電子数の関係(+印・青線)。挿入図は Fe/Pt(001) 表面における磁気異方性エネルギーの電界依存性。

計算を行う必要があり、現在酸化マグネシウムとの接合系について研究を進めている。

### 4 まとめ

有限電界のもとでポアソン方程式と第一原理計算量子力学方程式を自己無撞着に解くことにより、電界による磁気異方性エネルギーの変化を見積もることに成功した。今後、誘電体との接合系やより複雑な表面・界面構造についての計算を現実的な計算時間内で行う上で、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が必要となる。

### 参考文献

- [1] D. Chiba et. al., Science 301, 943 (2003).
- [2] T. Maruyama et. al., Nature Nanotech. 4, 158 (2009).
- [3] M. Weisheit et. al., Science 315, 349 (2007).
- [4] M. Tsujikawa and T. Oda, Phys. Rev. Lett. 102, 247203 (2009).
- [5] T. Oda and A. Hosokawa, Phys. Rev. B 72, 224428 (2005).
- [6] M. Otani and O. Sugino, Phys. Rev. B 73, 115407 (2006).
- [7] C. G. Duan et. al., Phys. Rev. Lett. 101, 137201 (2008).
- [8] K. Nakamura et. al., Phys. Rev. Lett. 102, 187201 (2009).