

機関番号：13301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20510102

研究課題名（和文）相対論的擬ポテンシャルを用いた第一原理分子動力学法の開発と応用

研究課題名（英文） Development and application of first-principles molecular dynamics method by using a relativistic pseudopotential.

研究代表者

小田 竜樹（オダ タツキ）

金沢大学・数物科学系・教授

研究者番号：30272941

研究成果の概要（和文）：スピン軌道相互作用などほとんど全ての相対論効果を含む電子に対する擬ポテンシャルの開発を推進し、これらを既存の第一原理分子動力学法へ組み込む開発研究を行い、さらに開発された計算コードを用いて、スピントロニクス等で重要となる磁気異方性の電界効果や半導体のラシュバ効果といった新しい研究分野において計算科学的理論的研究を推進した。その結果、開発した計算コードがこれらの分野において重要な研究手段を提供することを実証した。

研究成果の概要（英文）：We have developed the pseudopotentials which includes almost all the relativistic effects and installed them to the first-principles molecular dynamics method. Moreover, we have applied the computational code to investigate electric field effects on magnetic anisotropy and Rashba's effects on the surfaces of semiconductors, which will play important roles in spin electronics applications. As the result, it was verified that the computational code developed has been found to provide a responsible tool for research in the new science field.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2009年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：ナノ表面・界面磁性

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学 ・ ナノ材料・ナノバイオサイエンス

キーワード：スピン軌道相互作用, 擬ポテンシャル, 第一原理分子動力学法, 磁気異方性, ラシュバ効果, スピントロニクス

## 1. 研究開始当初の背景

白金表面につくったステップ構造にコバルト原子鎖を作り、磁気円二色性X線解析法などの測定により、磁気異方性等の磁性解析が盛んに行われるようになっていた。ナノ構

造を作製する自己集合的なエピタキシャル技術の進展もさることながら、面直磁気異方性が観測されことも重要であった。白金基板の構造をデザインすることにより、必要な磁気異方性を実現することが可能であることも示唆していた。実験結果を解明するための

理論的研究も盛んに行われているが、質と量ともに理論的アプローチは十分ではなかった。特に、表面・界面構造の構造最適化を行った上で、白金などの重元素を十分な計算精度で扱うこと、磁気異方性について言及できることの2点について理論的研究を行う上で不可欠であった。このために必要なのが、スピン軌道相互作用をとり入れた相対論的電子の取り扱いであった。

我々の研究グループは、相対論効果を十分に取り入れて作成した擬ポテンシャルを作成できつつある段階であり、その擬ポテンシャルの開発と、その効果を取り入れた第一原理計算手法の開発が求められていた。本研究の予算交付決定時には、いくつかの特定の元素を含む系について、第一原理分子動力学法を用いた計算が、可能となりつつあった。

## 2. 研究の目的

電子運動の相対論的補正から導出されるスピン軌道相互作用が、次世代を担うスピントロニクス(スピントロニクス)素子の物質探索やマルチフェロイック(複合強秩序相)発現物質の探索・解明といった重要課題で中心的な起源となっている。スピン軌道相互作用は、電子構造のバンド幅といった物理量よりも小さなエネルギースケールであるが、ナノテクノロジーの進歩と相まった実験技術の進歩により、この相互作用を顕に電子デバイスに活用する試みや、表面や界面分野においては、新奇材料の開発に向けた基礎研究が盛んになっている。また固体分野においても、スピン流といった新しく認知された物理現象の解明が始まっている。このような低消費電力指向や低エネルギースケールの現象解明は、省資源・省エネルギーを謳う社会的要請に沿ったものであり、基盤研究として推進されるべきものである。本研究では、スピン軌道相互作用などほとんど全ての相対論効果を含む電子に対する擬ポテンシャルの開発を継続し、これらを既存の第一原理分子動力学法へ組み込む開発研究を一層推進するとともに、スピントロニクス等での重要物質に応用することを目的とする。

## 3. 研究の方法

周期表第6周期の元素(ハフニウム, タンタル, タングステン, レニウム, オスミウム, イリジウム, 白金, 金, 水銀, タリウム, 鉛, ビスマス, ポロニウム)について相対論的擬ポテンシャルを作成し、その有用性を明らかにする。擬ポテンシャルを適用する系として、白金および金の表面にある鉄およびコバル

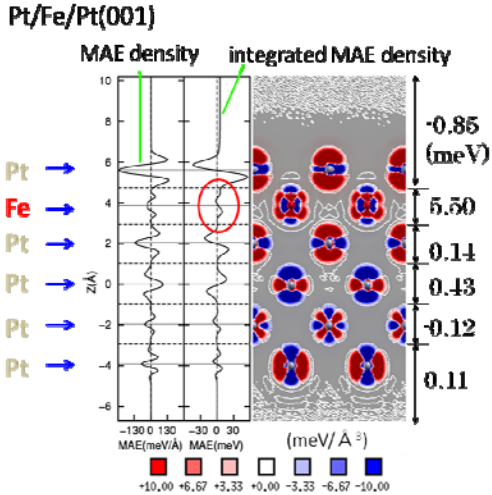
トの磁性原子の系について、原子構造と磁気異方性の関係や電子構造に現れるラシュバ効果を調べる。白金-鉄に対しては、外部電場を印加し、計算方法を確立するとともに、磁化(保磁力)制御の可能性を探る。系の軌道磁気モーメントを第一原理計算の枠組みで計算する手法を定式化し、その計算コードを開発する。シリコン基板上に配置した重い原子(タリウム, ビスマス等)の電子状態を調べ、角度分解スピン偏極光電子分光法の実験結果との対応を得て、ラシュバ効果が現れる波数領域やスピン偏極効果を明らかにする。

## 4. 研究成果

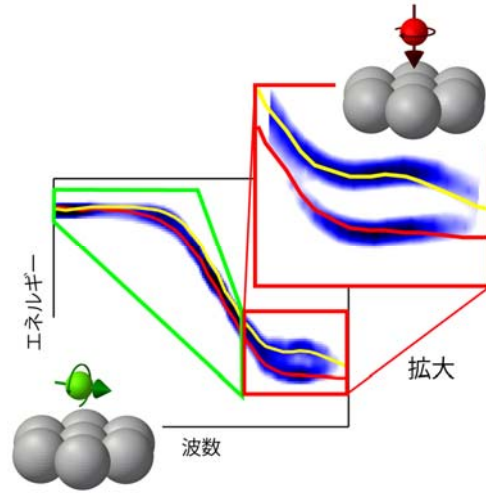
### (1) 磁気異方性エネルギー

① 孤立した鉄鎖に電界を印加した系について、磁気異方性電界効果とその電子状態変化異について研究した。磁気異方性の電子状態起源を明らかにすると同時に、電界効果に関する解析方法を確立するために、比較的単純な系について詳細な計算を行った。鉄鎖は、白金等の微斜面上に自己集成的に作製されている。そこで本研究では、白金(997)微斜面に鉄鎖が担持された場合の原子間距離に固定した系を対象にした。この孤立した鉄鎖では、鎖方向の磁化容易軸をもち、異方性エネルギーは  $3.23\text{meV/Fe}$  である。フェルミ準位には  $3d$  軌道少数スピン状態があるが、その中でも  $xy$  および  $x^2-y^2$  軌道には、磁化の方向に依存した大きなスピン軌道分裂がみられ、大きな異方性エネルギーの主な起源になっている。

電界印加は、系の電子数を制御することにより電界を発生させる仕組みになっている。電子数の変化に比例して電界の大きさが表れ、電子数変化が小さいうちは、磁気異方性エネルギーも比例して変化する。電界により  $s$  軌道の電子が大きくその分布を変化させるため、 $s$  軌道とよく混成する  $3z^2-r^2$  軌道の準位が大きく変化する。このため系の電子を増やしてゆくと  $s$  軌道とともに  $3z^2-r^2$  軌道に優先的に占有されてゆく。このとき、フェルミ準位を挟んでこの軌道から  $xz$  および  $yz$  軌道、あるいは、 $xz$  および  $yz$  軌道から  $xy$  および  $x^2-y^2$  軌道へというように、磁気軌道量子数が1つだけ変化する遷移が磁気異方性エネルギーを大きく減らすことになると考えられる。電界印加により、電子数を変化させることもさることながら、 $d$  電子軌道間のエネルギー位置関係を変化させることが可能で、その結果磁気異方性を変化させることが可能であることが明らかとなった。また鉄鎖方向に、垂直に磁化を向けた場合は、鎖方向に流れる電流にラシュバ効果による大きな変化がみられると予想され、スピン分極した輪



(図 1)



(図 2)

送係数に大きな変化が期待されることがあるとの知見を得た。

② ナノメートルサイズの垂直磁気異方性をもつ材料が求められているなか、Pt/Fe/Pt(001)および Fe/Pt(001)の薄膜系の磁気異方性エネルギーについて電界効果を研究した。強い垂直磁気異方性を示す系での電界効果の理論計算はまだほとんど行われていなかったため、本研究の反響は大きい。また電界駆動型磁気デバイスの開発研究に対して、理論的起源を提供する研究になっていると考えられる。

Pt/Fe/Pt(001)薄膜の磁気異方性エネルギーは電界に対して線形に変化し、表面から磁気層方向(内向きと定義)の電界に対して減少するという結果が得られた。FePt 薄膜における実験で得られている傾向と一致することが明らかとなった。電界に対する MAE 変化量の割合は、Pt/Fe/Pt(001)薄膜において 72fJ/Vm と得られ、以前に行われた計算で得られている鉄薄膜等の値に比べ大きな値であり、FePt を用いることにより大きな磁気異方性電界効果が得られることが明らかとなった。また、Fe/Pt(001)の電界効果も Pt/Fe/Pt(001)に匹敵するものであり、電子状態の解析からも、大きな電界効果を得るためには Pt の役割が大きいことも明らかとなった。Pt を Au の置き換えた計算からこのことは実証されつつある。

本研究では、磁気異方性エネルギー密度の実空間分布を計算できるようにした結果、磁気異方性エネルギーがどういった局所部分から発現しているかを明らかにすることに成功した。磁気異方性エネルギーは、局所の変化が大きい割に、系全体で値は相殺される部分が多く小さな値になる。これまでその局所的な計算値に対する信頼性が非常に低かった。今後、本研究で開発した分布データを

計算することにより、磁気異方性の起源に対する理解を深めることができると考えられる。図 1 は、Pt/Fe/Pt(001)の磁気異方性エネルギー密度であり、Pt 層での値の絶対値は大きい、その寄与が相殺されており、全体の値は鉄層の部分から発現していることが明らかとなった。

## (2) ラッシュバ効果

① シリコン表面にタリウムの重い元素で構成される 1 原子層を積層した系について、スピン軌道相互作用をあらわに取り入れた表面電子構造計算を実施した。スピン方向が表面面内に向いている従来型ラッシュバ効果とは異なり、表面面直のラッシュバ効果が現れることを発見した。さらに電子状態の解析から、この新規な現象の微視的な起源についても明らかにした。この現象は、角度分解光電子分光法の実験結果でも実証され、実験グループと共同で記者発表を行った。その反響は大きく幾つかの新聞報道で報道された。また短いながらもテレビ番組で、スピントロニクスへの萌芽的研究成果として紹介された。図 2 は、タリウム吸着シリコン表面の電子バンド。赤色と黄色の実線は計算データを表し、青いぼかしは実験データを表す。→↓はスピンの向きを示す。

② シリコン表面に鉛、ビスマスの重い元素で構成される 1 原子層を積層した系について、スピン軌道相互作用をあらわに取り入れた表面電子構造計算を実施した。スピンが面直を向くラッシュバ効果の特徴は、原子配列(対称性)に由来する運動量空間の量子状態から発現することを鉛およびビスマスの 2 つの系にて確かめた。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 12 件)

- ① Masahito Tsujikawa, Shinya Haraguchi, Tatsuki Oda, Yoshio Miura and Masafumi Shirai, A Comparative Ab Initio Study on Electric-Field Dependence of Magnetic Anisotropy in MgO/Fe/Pt and MgO/Fe/Au Films, *J. Appl. Phys.*, 109 (2011) 07C107(1-3), 査読有
- ② Shinya Haraguchi, Masahito Tsujikawa, Junpei Gotou, Tatsuki Oda, Electric-field effects on magnetic anisotropy in Pd/Fe/Pd(001) surface, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 44 (2011) 064005(1-8), 査読有
- ③ A. Araki, T. Nishijima, M. Tsujikawa and T. Oda, Spin-splitting band dispersions of the heavy elements on Si (111)-(1×1) surface, *J. Phys.: Conf. Ser.*, 200 (2010) 062001(1-4), 査読有
- ④ T. Oda, Y. Yokoo, H. Sakashita, and M. Tsujikawa, Magnetic Anisotropy in Small Clusters FePt, Fe<sub>2</sub>Pt, and FePt<sub>2</sub>: from a First-Principles Study, *J. Comput. Theor. Nano.*, 6 (2009) 2603-2607, 査読有
- ⑤ M. Tsujikawa and T. Oda, Finite electric field effects in the large perpendicular magnetic anisotropy surface Pt/Fe/Pt(001): a first principles study, *Phys. Rev. Lett.*, 102 (2009) 247203(1-4), 査読有
- ⑥ K. Sakamoto, T. Oda, A. Kimura, K. Miyamoto, M. Tsujikawa, A. Imai, N. Ueno, H. Namatame, M. Taniguchi, P. E. J. Eriksson, and R. I. G. Uhrberg, Abrupt rotation of the Rashba spin to the direction perpendicular to the surface, *Phys. Rev. Lett.*, 102 (2009) 096805(1-4), 査読有
- ⑦ M. Tsujikawa and T. Oda, Electronic structure and magnetic anisotropy of a constrained Fe chain in electric field, *J.*

*Phys.: Condens. Matter*, 21 (2009) 064213 (1-6), 査読有

[学会発表] (計 18 件)

- ① T. Oda, Toward a Computer Modeling in Magnetic Anisotropy and its Electric-Field-Control for Nano-Structures, International Symposium on Computational Science 2011 (15-17th February 2011), Kanazawa University, Kanazawa, 16th February 2011 (Ishikawa)
- ② T. Oda, Magnetic anisotropy and its electric field effect in the nano-structures, The 13th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (Asian13), (November 1-3th 2010), POSCO International Center (PIC), POSTECH, Pohang, November 3th 2010 (Korea)
- ③ T. Oda, Toward a Computer Modeling in Magnetic Anisotropy and its Electric-Field-Control for Nano-Structures, European Material Research Science (E-MRS) 2010 Fall Meeting, (September 13-17th 2010), Central Campus of Warsaw University of Technology, Warsaw, September 14th 2010 (Poland)
- ④ T. Oda, Electric-Field Effect on the Magnetic Anisotropy of the Ferromagnetic/Dielectric Films: A First-Principles Study, International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications (ISAMMA) (July 12-16th 2010), Sendai International Center (room Tachibana), Sendai, July 15th 2010 (Miyagi)
- ⑤ T. Oda, Magnetic anisotropy and its electric field effect in the nano-structures of Fe-Pt system, 6th RIEC (Research Institute of Electrical Communication) International Workshop on Spintronics(5, 6th February 2010), RIEC Conference Room, Laboratory for Nanoelectronics and Spintronics, Sendai, 6th February 2010 (Miyagi)
- ⑥ T. Oda, "Magnetic anisotropy and its finite electric field effect in the nano-structures of Fe-Pt system", International Symposium on Computational Science (ISCS2009), Sanur Paradise Hotel, October 28 2009 (Indonesia)
- ⑦ T. Oda, Masahito Tsujikawa, "Magnetic anisotropy and its finite electric field effect in the nano-structures of Fe-Pt system", International Conference on Magnetism 2009 (ICM2009), Congress Center, Karlsruhe (Friedrich Weinbrenner Hall), July 28th 2009 (Germany)

〔その他〕

報道関連情報

- ①科学新聞（2009年3月13日 4面）  
「スピントロニクスに技術革新 半導体表面の電子スピン ―千葉大、金沢大、広島大の研究チーム― 突然直立する現象観測」
- ②北陸放送（MRO）NEWS RUNNER 放送（2009年3月4日 18時22分から23分 約1分30秒間）
- ③北國新聞（2009年3月4日社会3 27面）「電子立つ 世界初、半導体表面で発見 金大・小田准教授ら観測 次世代型へ加速」
- ④日刊工業新聞（2009年3月4日 28面）「電子スピン、垂直起立 千葉大など「コマ回し」現象観測」

ホームページ

①

<http://cphys.s.kanazawa-u.ac.jp/~oda-web/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

小田 竜樹（オダ タツキ）  
金沢大学・数物科学系・教授  
研究者番号：30272941