

令和元年5月20日現在

機関番号：14101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05415

研究課題名(和文) 外部電場下における界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力の第一原理計算

研究課題名(英文) First principles calculations of interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in external electric field

研究代表者

中村 浩次 (Nakamura, Kohji)

三重大学・工学研究科・教授

研究者番号：70281847

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力を計算するための大規模系第一原理計算手法プログラムを開発した。プロトタイプ系のCo/Pt及びCo/Ir金属2層薄膜、3d遷移金属にFe, Co, Niを、5d重金属にHf, Ta, W, Re, Os, Ir, Ptとした3d遷移金属/5d重金属の2層薄膜に対して、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力に関する系統的な解析を行った。同計算に外部電場を導入し、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力に対する電界効果を考察した。界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力は3d遷移金属および5d重金属の組合せにより顕著に依存すること、また外部電場印加により変化することがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

遷移金属薄膜磁性に関する基礎的知見は低消費電力且つ高い集積度・速い磁化反転速度を持つ不揮発性磁気デバイスの開発に不可欠であり、将来的には外部電界による磁化操作が強く望まれている。本研究で注目する界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力は磁壁を移動させるための最低限必要な電流(閾電流)が数オーダー減少するなど、デバイス開発に極めて重要な相互作用力として知られている。本研究成果は界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力の起源や外部電界効果を理論的な面から明らかにし、応用面においても不揮発性磁気デバイス開発に向け重要な基礎的知見を供する。

研究成果の概要(英文)：A large-scale first-principles calculation method for treating an interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction (DMI) was developed. By using this method, a systematic analysis of the interfacial DMI of prototypical Co/Pt and Co/Ir bilayer thin-films and 3d transition-metal (Fe, Co, Ni)/5d heavy-metal (Hf, Ta, W, Re, Os, Ir, Pt) thin films was carried out and revealed that the interfacial DMI parameters significantly depend on the choice of 3d and 5d metal species. Next, the calculation method including an external electric-field was developed and the electric-field effect to the interfacial DMI was investigated, where the interfacial DMI parameters are found to be tuned by an application of electric-field.

研究分野：計算物理学

キーワード：界面磁性 第一原理計算

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

遷移金属薄膜磁性や磁化制御に関する基礎的知見は低消費電力且つ高い集積度・速い磁化反転速度を持つ不揮発性デバイスの開発に不可欠であり、将来的には外部電界による磁化操作が強く望まれている。本研究で注目する磁性金属薄膜/重金属界面に起因するジャロシンスキー・守谷相互作用(界面ジャロシンスキー・守谷相互作用)は界面構造非対称性由来する非対称な交換相互作用で、例えば、図1に示すように、界面に平行に沿って磁化方向が右回転( $q>0$ )と左回転( $q<0$ )に変化する場合、両回転方向で異なるエネルギー状態を与える。実際に、この界面ジャロシンスキー・守谷相互作用により磁壁を移動させるための最低限必要な電流(閾電流)が数オーダー減少するなど、デバイス開発に極めて重要な相互作用力として知られている。他方、金属磁性の電界効果の研究は、2007年にFePt(PePd)/電解液界面系の保持力の実験で端を発し、Fe/MgO界面(あるいはFe(Co)/MgOやFeCoB/MgO界面)で、強い界面垂直磁気異方性が発現すること、電界により磁気異方性が変化することが実験及び理論計算により明らかにされてきた。さらに、Co/Pt薄膜においてキュリー温度や磁気モーメントが電界印加による変化すること、近年では、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力も電界により変化することが実験で示唆され、その電界効果は、結晶磁気異方性の電界効果と同様に、次世代の省エネルギースピエレクトロニクスデバイスのためのキーテクノロジーとして位置づけられている。現在、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力の定量的な予測と電界による磁化操作の可能性を明らかにすることが重要な課題となっている。

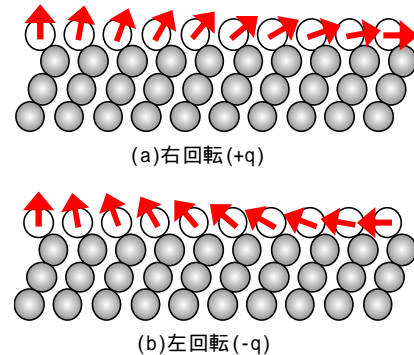


図1. 磁性金属薄膜/重金属界面における右回転と左回転の磁化回転。界面ジャロシンスキー・守谷相互作用により両エネルギー状態が異なる。

### 2. 研究の目的

本研究では、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力の第一原理計算手法をすでに完成をさせていることから、定量的な解析のために不可欠な大規模(原子数の多い)系を取扱うためのプログラムを開発する。引き続き、外部電場が無い場合の界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力の第一原理計算を行う。ここでは、プロトタイプ系で知られるCo/Pt(111)及びCo/It(111)金属薄膜、3d遷移金属にFe, Co, Niを重金属にHf, Ta, W, Re, Os, Ir, Ptとした3d遷移金属/5d重金属薄膜構造を用い、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力に関する系統的な解析を行う。同計算に外部電場を導入し、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力に対する電界効果を明らかにする。

### 3. 研究の方法

研究代表者が独自に開発してきた第一原理計算手法(全電子フルポテンシャル線形化補強平面波法:FLAPW法)を、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力の定量的な大規模計算が可能なプログラムに改良する。本計算手法では、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力を2つのステップ、一般化ブロッホ定理を用いたスピンスパイラル構造の第一原理計算、スピン軌道相互作用を導入するためのスーパーセル法で導出する。まず、外部電場が無い場合の界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力を計算する。Co/Pt(111)及びCo/It(111)の2層金属薄膜を用い、また、前者についてはCo原子層とPt原子層の厚さの違いによる界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力の違いも考察する。次に、3d遷移金属層にFe, Co, Ni金属層を、5d重金属層にPt, Ir, W, Ta金属層とした3d遷移金属/5d重金属の2層構造に対して、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力の系統的な解析を実施し、界面バンド構造との関連性を明らかにする。以上の計算モデルに対して、外部電場(-5V/nmから+5V/nmまで)を導入し、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力に対する電界効果を明らかにする。

### 4. 研究成果

界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力の大規模計算が可能なプログラムを以下の開発した。一般化ブロッホ定理を用いたスピンスパイラル構造の第一原理計算プログラムを改良した。一般化ブロッホ定理の導入により、長波長のスパイラル構造(数百原子数)を小さな化学的ユニットセル(数原子個)で計算できる。しかし、モデルの膜厚を増やした場合、結晶構造の対称操作が利用できないこと、逆空間のk点数を数千点以上も考慮しなければならないこと、ノンコリニア磁性を考慮しなければならないことから、行列要素と固有値を求めるプログラムでメモリ容量と計算時間を縮小するための最適化を行った。引き続き、スピン軌道相互作用を導入するための第二変分法プログラムを改良した。スピン軌道相互作用を考慮する場合、一般ブロッホ定理が利用できないため、ユニットセルの面内格子定数をスパイラル波長(例えば波数 $q=0.01$ の場合、格子定数の100倍の長さ)に一致させた巨大なスーパーセルを用いる必要がある。本手法では、前述のスピンスパイラル構造の波動関数を改めて基底関数として取り直し、第二変分法でスピン軌道相互作用を取り入れ、全エネルギーを再計算する。ここでは、メ

メモリ容量と計算時間が飛躍的に増大することから、スピン軌道相互作用に関する行列要素と固有値を求めるプログラムを最適化した。界面ジャロシンスキー守谷相互作用力は前述のスピン軌道相互作用を考慮した全エネルギーの波数  $q$  依存性から最小二乗法により  $q$  の 1 次項を中質して決定した。

プロトタイプの Co/Pt 及び Co/Ir 系の 2 層金属薄膜に対して、まず、Pt(111) 基板上的 Co 薄膜の構造安定性を第一原理計算により解析した。その結果、Pt 界面上の Co 層は fcc 構造的な積層が、第 2 層目以上の Co 層では hcp 構造的な積層がエネルギー的に安定であることがわかった。外部電場が無い場合の、Pt(111) および Ir(111) 基板上に Co 原子層を積層させた金属二層膜に対して、スピン軌道相互作用を考慮したスピンスパイラル構造の全エネルギーから界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力パラメータを求めた。Co 層を単原子層とした場合、Pt および Co 基板では、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力パラメータはそれぞれ 12.6、-7.6 meVnm となり、Pt 基板では正の値、Ir 基板では負の値となり、強い基板種依存性が得られた。また、Co 膜厚を 3 原子層に変化させた場合、絶対値が小さくなる傾向がみられたが、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力の基板種依存性の変化は無く、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力は界面に起因することが示唆された。

次に、外部電場を考慮した場合の界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力を計算した。図 2 に、 $\pm 5\text{V/nm}$  の外部電場を真空層に導入したスピンスパイラル構造の全エネルギーのスパイラル波数  $q$  依存性を示す。全エネルギーの値がスピンスパイラルの回転方向 ( $+q$  と  $-q$ ) で異なり、界面ジャロシンスキー・守谷相互作用力が生じること、外部電場が正と負の場合でエネルギー依存性が僅かに異なること(図の三角印)を確認した。これは、外部電場の導入により界面 Co と Pt 層の d 軌道状態密度が変化するために生じることがわかった。また、界面ジャロシンスキー守谷相互作用力パラメータが外部電場を印加することにより、10%程度変化することが示唆できた。

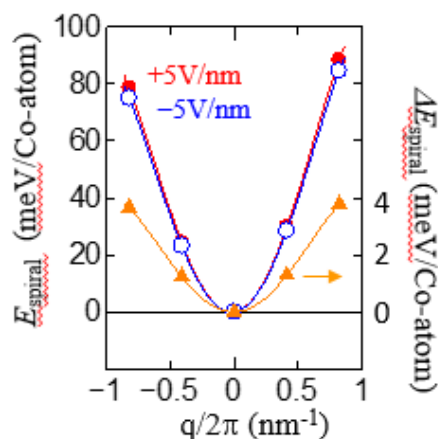


図 2 .  $\pm 5\text{V/nm}$  の外部電場を真空層に導入したスピンスパイラル構造の全エネルギーのスパイラル波数  $q$  依存性。三角印は外部電圧が正と負の場合の差を表している。

3d 遷移金属(Fe, Co, Ni)と 5d 重金属(Hf, Ta, W, Re, Os, Ir, Pt)の 2 層薄膜に対して界面ジャロシンスキー守谷相互作用力の金属種依存性を系統的に解析した。5d 重金属を周期律表順の Pt, Ir, Os, Re と変化させた場合、界面ジャロシンスキー守谷相互作用力パラメータがそれぞれ 258, -160, 40, -100 meV/nm と振動し、Co/Pt で最も大きな正の値、Co/Ir で大きな負の値となること、W, Ta, Hf と変化させた場合には、146, 79, 41 meV/nm と正の値から減少する傾向が示された。各原子層のエネルギー寄与の解析により、Co/Pt では界面の Pt が、Co/Ir では界面の Ir が界面ジャロシンスキー守谷相互作用力パラメータの決定のうえで重要な役割を担っていることがわかった。また、これらの 5d 金属種に対する界面ジャロシンスキー守谷相互作用力の 3d 金属種依存性を調べた。Fe の場合、Co に比べ、界面ジャロシンスキー守谷相互作用力パラメータが全体的に負の値の方向にシフトする傾向に、Ni では、Ni/Pt では僅かに得られたものの、他の 5d 重金属ではほぼゼロの値となった。以上のことから、界面ジャロシンスキー守谷相互作用力は 3d 遷移金属および 5d 重金属の組合せにより顕著に依存することが示唆できた。

## 5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 15 件)

K. Hayashi, A.-M. Pradipto, K. Nozaki, T. Akiyama, T. Ito, T. Oguchi, K. Nakamura, Machine learning approach for data analysis of magnetic orbital moments and magnetocrystalline anisotropy in transition-metal thin films on MgO(001), Journal of Electronic Materials 48, 1319-1323, 2019, 査読有.

S. Ando, T. Akiyama, A.-M. Pradipto, T. Ito, K. Nakamura, Effect of 4d and 5d transition-metal insertions to spin-dependent transports in Fe/MgO superlattices Journal of Electronic Materials 48, 1380-1385, 2019, 査読有.

K. T. Yamada, M. Suzuki, A.-M. Pradipto, T. Koyama, S. Kim, K. -J. Kim, S. Ono, T. Taniguchi, H. Mizuno, F. Ando, K. Oda, H. Kakizakai, T. Moriyama, K. Nakamura, D. Chiba, T. Ono, Microscopic investigation into the electric field effect on proximity-induced magnetism in Pt, Physical Review Letters 120, 157203/1-6, 2018, 査読有.

A.-M. Pradipto, T. Akiyama, T. Ito, K. Nakamura, External electric field driven

modification of the anomalous and spin Hall conductivities in Fe thin films on MgO(001), Physical Review B 97, 024401/1-8, 2018, 査読有.

K. Nawa, T. Akiyama, T. Ito, K. Nakamura, T. Oguchi, M. Weinert, Scaled effective on-site Coulomb interaction in density functional theory +U method for correlated materials, Physical Review B 97, 035117/1-7, 2018, 査読有.

K. Nakamura, A.-M. Pradipto, T. Akiyama, T. Ito, T. Oguchi, M. Weinert, Symmetric and asymmetric exchange stiffnesses of transition-metal thin film interfaces in external electric field, Journal of Magnetism and Magnetic Materials 457, 97-102, 2018, 査読有.

K. Yamamoto, A.-M. Pradipto, K. Nawa, T. Akiyama, T. Ito, T. Ono, K. Nakamura, Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction and orbital magnetic moments of metallic multilayer films, AIP Advances 7, 056302/1-5, 2017, 査読有.

A.-M. Pradipto, T. Akiyama, T. Ito, K. Nakamura, Mechanism and electric-field-induced modification of magnetic exchange stiffness in transition-metal thin films on MgO(001), Physical Review B 96, 014425/1-8, 2017, 査読有.

K. Nakamura, T. Nomura, A.-M. Pradipto, K. Nawa, T. Akiyama, T. Ito, Effect of heavy-metal insertions at Fe/MgO interfaces on electric-field-induced modification of magnetocrystalline anisotropy, Journal of Magnetism and Magnetic Materials 429, 214-220, 2017, 査読有.

[学会発表](計 52 件)

K. Nakamura, T. Akiyama, T. Ito, Ab initio treatment of magnetocrystalline anisotropy, exchange interaction, and Dzyaloshinskii-Moriya interaction of transition-metal thin films, The 5th International Conference of Asian Union of Magnetism Societies, 2018/6/3-2018/6/7, Jeju (Korea).

A.-M. Pradipto, T. Akiyama, T. Ito, K. Nakamura, First principles calculations of electric field effects to magnetocrystalline anisotropy, exchange interaction, and Dzyaloshinskii-Moriya interaction, The 3rd International Conference of Materials Research Society of Indonesia, 2018/7/31-2019/8/2, Denpasar (Indonesia).

K. Nakamura, A.-M. Pradipto, T. Akiyama, T. Ito, T. Oguchi, Atomic-layer alignment tuning of metal thin-film multilayer for perpendicular magnetocrystalline anisotropy and its electric field modification, International Union of Materials Research Societies-International Conference on Electronic Materials, 2018/8/19-2019/8/24, Daejeon (Korea).

A.-M. Pradipto, T. Nomura, T. Akiyama, T. Ito, K. Nakamura, Control of magnetism and magnetotransport properties in Fe/MgO-based thin films by electric field, Korean Physics Society Fall Meeting, 2018/10/24-2019/10-26, Changwon (Korea).

A.-M. Pradipto, K. Yakushiji, W. S. Ham, S. Kim, Y. Shiota, T. Moriyama, K.-W. Kim, H.-W. Lee, K. Nakamura, K.-J. Lee, T. Ono, Broken inversion symmetry-induced enhancement of perpendicular magnetic anisotropy in Co/Pd/Pt-based multilayer, 秋季第 79 回応用物理学会学術講演会, 2018/9/18-2019/9/21, 名古屋.

K. Nakamura, A.-M. Pradipto, S. Ando, T. Akiyama, T. Ito, M. Weinert, Role of external electric field and spin-orbit coupling in magneto-transport properties at ferromagnetic metal/MgO interfaces, American Physical Society March Meeting, 2018/3/5-2017/3/9, Los Angeles (USA).

A.-M. Pradipto, T. Akiyama, T. Ito, K. Nakamura, Exchange Stiffness in Transition-Metal Thin Films on MgO(001) Revisited: Mechanism and Electric-Field-Induced Modification, 9th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology, 2017/6/4-2017/6/8, 福岡.

A.-M. Pradipto, T. Akiyama, T. Ito, K. Nakamura, Electric-field-induced modification to magnetic and transport properties of Fe/MgO-based interfaces, Psi-k/CECAM Research Conference on AB INITIO SPIN-ORBITRONICS, 2017/9/25-2017/9/29, Pescara (Italy).

K. Nakamura, K. Nozaki, A.-M. Pradipto, T. Akiyama, T. Ito, T. Oguchi, Data-driven analysis of magnetocrystalline anisotropy, magnetic moments, and structural stability in transition-metal thin films on MgO(001), The 3rd Japan-Korea Spintronics Symposium, 2017/12/18-2017/12/20, Seoul (Korea).

K. Nakamura, A.-M. Pradipto, T. Akiyama, T. Ito, Dzyaloshinskii-Moriya interaction at metallic bilayer interface, 第 41 回日本磁気学会学術講演会, 2017/9/19-2017/9/22, 福岡.

K. Nakamura, Electric-field-induced modification of symmetric and asymmetric exchange stiffnesses of transition-metal thin films, 6th Spin-Polarized Scanning

Tunneling Microscopy International Conference, 2016/8/28-2016/8/31, 千葉.  
K. Nawa, T. Akiyama, T. Ito, T. Oguchi, M. Weinert, K. Nakamura, Interfacial magnetic anisotropy in rare-earth metal ultra-thin films, The 61st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2016/10/31-2016/11/4, New Orleans (USA).  
K. Yamamoto, K. Nawa, A.-M. Pradipto, T. Akiyama, T. Ito, T. Ono, K. Nakamura, Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction and orbital magnetic moments of metallic multilayer films, The 61st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2016/10/31-2016/11/4, New Orleans (USA).  
中村浩次, 名和憲嗣, 秋山亨, 伊藤智徳, 磁性金属超薄膜における結晶磁気異方性, 交換スティブネス, ジャロシンスキー・守谷相互作用力に対する電界効果, 第40回日本磁気学会学術講演会, 2016/9/5-2016/9/8 (金沢).  
山本拳士, 名和憲嗣, A.-M. Pradipto, 秋山亨, 伊藤智徳, 小野輝男, 中村浩次, 3d/5d 金属二層膜における界面ジャロシンスキー・守谷相互作用録と軌道磁気モーメント, 第40回日本磁気学会学術講演会, 2016/9/5-2016/9/8 (金沢).

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年：  
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。