

Vékonyrétegek és nanoszerkezetek
véges hőmérsékletű mágnessége

PhD téziszfüzet

Rózsa Levente

Témavezető: Udvardi László

BME
2016

Előzmények

A mágneses anyagok egyre fontosabb szerepet töltenek be a modern információtechnológiában. Mióta a gigantikus mágneses ellenállás és a kicserélődési eltolódás (exchange bias) jelenségeit egyre elterjedtebben használják a merevlemezekben és a mágneses memóriákban, hagyományos szerepük a mágneses adattárolásban növekvő tendenciát mutat. A legújabb fejlemények a spin információ kiaknázására törekednek logikai áramkörökben: a spintronikában ezt a szabadsági fokot az elektronok töltéséhez csatolják, a magnonikában spinhullámokat alkalmaznak, míg a skyrmionikában a topologikus tulajdonságokra koncentrálnak. A mágneses anyagok továbbra is vonzzák az alap kutatásban dolgozó tudósok figyelmét; példaként megemlítjük a nemrégiben megfigyelt spin-, topologikus és skyrmionikus Hall-effektust, valamint a spinspirálok és skyrmionrácsokat mint nemkollineáris mágneses fázisokat.

Hasonlóan a félvezető alapú technológiákhoz, az adatsűrűség növelésének igénye az eszközök méretének, illetve dimenziójának csökkenéséhez vezetett. Egy lépés ebben az irányban a pár atomsor vastag és pár mikrométer vagy néhány száz nanométer széles mágneses vékonyrétegek alkalmazása, de a rendszerméret elérheti a pár tucat atomból álló atomfürtöket, például a rövid egydimenziós láncokat is. Az alacsony dimenziós mágneses rendszerek elméleti leírásának célja olyan modellek megalkotása, amelyek viszonylag kevés bemenő paraméter alapján képesek megmagyarázni a kísérletekben megfigyelt jelenségeket, valamint képesek előrejelzéseket tenni. Mivel az új eszközöktől elvárható, hogy szobahőmérsékleten is működjenek, az elméleti modellnek képesnek kell lennie az alapállapot tulajdonságokon felül a véges hőmérsékletű jelenségeket is kezelni.

Az *ab initio* elektronszerkezet-számítási módszerek alkalmazhatóak a szilárd testek sávszerkezetének és a kapcsolódó kísérleti mennyiségeknek a leírására a rendszer összetevőinek, illetve azok geometriai elhelyezkedésének ismeretében. Ezen technikák közül a Korringa–Kohn–Rostoker-módszer[Korringa, 1947; Kohn, 1954] előnye, hogy képes leírni olyan rendszereket, amelyek nem rendelkeznek eltolási szimmetriával a tér mindhárom irányában. A kétdimenziós felületek és határrétegek leírásához az árnyékolási módszert lehet használni, míg a kis atomfürtök esetén a beágyazás módszerét. A mágneses és elektronikus szabadsági fokok adiabatikus szétcsatolásának következtében ezekben a rendszerekben a mágneses jelenségek úgy írhatók le, ha a rács lokalizált mágneses momentumait klasszikus egységvektorokként kezeljük.

A sztochasztikus Landau–Lifshic–Gilbert-egyenlet[Brown, 1963] lehetőséget nyújt a klasszikus mágneses rendszerek időfejlődésének leírására véges hőmérsékleten, egy tapasztalati törvényeken alapuló modell segítségével. A számítások során a spinvektorok hossza nem változik, a hőmérsékleti egyensúlyt és az ehhez történő relaxációt egy csillapítási együttható, illetve a hőtartályhoz való csatolás írja le. A spindinamikai szimulációs módszer ezen mozgásegyenlet numerikus megoldását és a termodinamikai mennyiségek kiszámítását jelenti. A Metropolis-algoritmuson alapuló Monte Carlo-szimulációk nem követik közvetlenül az időfejlődést, de szintén képesek a rendszerek leírására termikus egyensúlyban. A Korringa–Kohn–Rostoker-módszer és ezen klasszikus szimulációs technikák összepárosítása lehetőséget nyújt többféle mágneses jelenség megértésére első elvekből kiindulva.

Célkitűzések

Disszertációm célja az volt, hogy megvizsgáljam az alacsony dimenziós mágneses rendszereket véges hőmérsékleten, és leírom az alacsony energiájú gerjesztéseket, a lehetséges fázisátalakulásokat és a metastabilis állapotokat. A vizsgálatok során a vékonyrétegeket és a nanoméretű atomfürtöket eltérő módszerekkel írtam le.

A vékonyrétegek esetén egy klasszikus Hamilton-függvényt használtam, melyben az együtthatókat *ab initio* számítások segítségével határoztam meg. Az első célkitűzés a kísérletekben megfigyelt jelenségek reprodukálására és megmagyarázására irányult. Spinpolarizált elektronok energiavesztésének mérésével sikerült egy és két atomsor vastag, W (110) felületén elhelyezett ferromágneses vasrétegek spinhullámspektrumát megállapítani. Kiderült, hogy a spinhullámok frekvenciája a hőmérséklet növelésével csökken[Zakeri, 2014]; erre a jelenségre próbáltam kvantitatív magyarázatot keresni. A két atomsor vastag vasréteg W (110) felületén alacsony hőmérsékleten spinspirál állapotba rendeződik, szemben a magas hőmérsékleten tapasztalt ferromágneses renddel. Céлом az volt, hogy ezt a spinpolarizált pásztázó alagútmikroszkópos mérésekben megfigyelt reorientációt[von Bergmann, 2006] egy elméleti modell segítségével megmagyarázzam. Azt is terveztem, hogy megvizsgálom a mágneses tér különböző értékeinél megfigyelt spinspirál, skyrmionrács és polarizált állapotokat PdFe kettősréteg esetén Ir(111) felületen, melyeket az előző esethez hasonlóan spinpolarizált pásztázó alagútmikroszkópos mérésekben figyeltek meg[Romming, 2013].

A második célkitűzés új jelenségek előrejelzését foglalta magába. Meg kívántam vizsgálni egy atomsor vastag vasréteg mágneses rendeződését és fázisátalakulásait, ha W helyett Ta (110) felületén helyezük el. A PdFe kettősréteg esetén arra voltam kíváncsi, hogy a különböző rendezett fázisok hogyan alakulnak át a paramágneses állapotba a hőmérséklet növelésével, illetve hogy a skyrmionok élettartamát hogyan befolyásolják a hőmérsékleti fluktuációk.

A nanoszerkezetek esetén a lokalizált momentumok közötti kölcsönhatást közvetlenül *ab initio* számításokra alapozva írtam le. Céлом az volt, hogy a hőmérsékleti effektusokat is figyelembe vegyem a számolások során, illetve megfigyeljem a különbségeket a közvetlen *ab initio* számolások és a spinmodellek között. Ebből a célból olyan numerikus módszereket terveztem megalkotni a sztochasztikus Landau–Lifsic–Gilbert-egyenlet megoldására, amelyeket közvetlenül lehet alkalmazni az *ab initio* számolások során, illetve vizsgálni akartam ezen módszerek sebességét és stabilitását. Végül egy egyszerű rendszert terveztem vizsgálni, egy tíz Co atomból álló láncot Au (001) felületén.

Módszerek

Az *ab initio* számításokhoz egy olyan programot használtam, amely az árnyékolt Korringa–Kohn–Rostoker-módszeren alapszik[Szunyogh, 1994]. Megalkottam és hozzáadtam a kódhoz olyan függvényeket, amely a sztochasztikus Landau–Lifsic–Gilbert-egyenletet oldják meg. A program speciális tulajdonságai miatt olyan numerikus integrálási módszerek alkalmazására volt szükség, amelyek az első elvekből meghatározott mennyiségeket használják, és helyesen írják le az egyensúlyi tulajdonságokat.

A klasszikus Hamilton-függvényen alapuló számolásokhoz egy Metropolis-dinamikát alkalmazó Monte Carlo-programot használtam. A programot átalakítottam spindinamikai szimulációk elvégzésére is, ugyanis a dinamikát kicseréltem a sztochasztikus Landau–Lifsic–Gilbert-egyenlet numerikus megoldására. A kódot kiegészítettem új mennyiségek

kiszámításával, például a statikus és dinamikus szórási tényezővel, valamint a topologikus töltéssel.

Spinhullámokon, illetve átlagtér-elméleten alapuló elméleti számításokat is végeztem. A numerikus számítások elvégzéséhez egyszerű programokat írtam, ugyanis az általam vizsgált spinspirál és skyrmionrács állapotokban az egyenletek sok változót tartalmaznak.

Új tudományos eredmények

A fő eredményeimet az alábbi tézispontokban foglaltam össze.

1. Spindinamikai szimulációk segítségével meghatároztam az egy atomsor vastag mágneses vékonyréteg lineáris válaszát időfüggő külső mágneses gerjesztés esetén. Megmutattam, hogy a hőmérsékleti fluktuációk csökkentik a spinhullámok frekvenciáját, és hogy ezt a jelenséget kvantitatív módon meg lehet magyarázni spinhullámokon alapuló perturbációs módszerek segítségével. Az eredmények az [I] cikkben kerültek publikálásra.
2. Egy és két atomsor vastag, W (110) felületén elhelyezett vasrétegek esetén meghatároztam a kölcsönhatási együtthatókat, valamint a rendszerek alapállapotait. Az egy atomsor vastag réteg síkbeli ferromágneses rendeződése összhangban van a kísérletekkel. Ugyan az *ab initio* számítások nem tudták a két atomsor vastag réteg spinspirál alapállapotát reprodukálni, a Monte Carlo-szimulációk megerősítették, hogy a könnyű mágnesezési tengely a síkra merőleges irányból a síkbeli irányba fordul el a hőmérséklet növelésével. Átlagtér-számítások és Monte Carlo-szimulációk segítségével megmutattam, hogy egy spinspirál állapot és a síkjára merőleges ferromágneses rendeződés között fázisátalakulások lehetségesek a hőmérséklet függvényében. Előrejeleztem, hogy a két atomsor vastag vasréteg esetén megjelenik egy elliptikus kúpos spinspirál állapot, amelyet eddig nem sikerült kísérletileg kimutatni. Az eredmények részben publikálásra kerültek a [III] és [IV] cikkekben.
3. Egy atomsor vastag, Ta (110) felületén elhelyezett vasréteg esetén meghatároztam a kölcsönhatási együtthatókat, valamint a rendszer lehetséges alapállapotait. Négy különböző alapállapotot azonosítottam a rendszerben a vasréteg és a felület közötti távolság függvényében, melyek közül három nemkollineáris spinspirál állapot. Spinhullám-kifejtés és Monte Carlo-szimulációk segítségével megjósoltam egy átalakulást a ferromágnesesből a SS I állapotba, valamint a SS II állapotból a SS I állapotba a hőmérséklet növelésével. A SS III állapotból a SS II állapotba történő, a szimulációkban megfigyelt átalakulást átlagtér-elmélet segítségével magyaráztam. Az eredmények a [IV] cikkben kerültek publikálásra.
4. Meghatároztam az Ir (111) felületén elhelyezett PdFe kettősréteg $B - T$ fázisdiagramját Monte Carlo-szimulációk segítségével. A hosszú távon rendezett cikloidális spinspirál, skyrmionrács és polarizált állapotok mellett találtam egy átmeneti állapotot, melyben a rend rövid távú, és a topologikus töltés fluktuál. A tömbi MnSi esetén elvégzett statikus szuszceptibilitást és a statikus szerkezeti tényezőzt összehasonlítva az általam számoltakkal ezt az átmeneti tartományt egy fluktuációrendezetlen állapotként azonosítottam. Hangsúlyoztam a skyrmionok véges élettartamának fontosságát ebben a tartományban véges külső tér mellett, és meghatá-

roztam az élettartamot spindinamikai szimulációk segítségével. Az eredmények az [V] cikkben kerültek publikálásra.

5. Megalkottam három numerikus megoldó módszert a lokális koordináta-rendszerben felírt sztochasztikus Landau–Lifšic–Gilbert-egyenlethez, és ezeket beleírtam az árnyékolt Korrington–Kohn–Rostoker-kódba. Egy egyszerű Heisenberg-láncon elvégezve a stabilitási vizsgálatot megállapítottam, hogy ezek közül az egy lépéses módszer a leghatékonyabb. Ezután egy tíz Co atomból álló láncot vizsgáltam Au (001) felületén *ab initio* spindinamikai szimulációk segítségével. Ugyan a Dzyaloshinsky–Moriya-kölcsönhatás miatt az alapállapotban a spinek kissé elfordulnak, megmutattam, hogy a hőmérsékleti egyensúlyi jellemzők leírásához elegendő egy első szomszédokat figyelembe vevő Heisenberg-modellt használni, míg ehhez az egy rácshelyre vonatkozó anizotrópiátagot hozzávéve az átfordulási idők is megmagyarázhatók. Az eredmények a [II] cikkben kerültek publikálásra.

Tézispontokhoz kapcsolódó tudományos közlemények:

- [I] L. Rózsa, L. Udvardi és L. Szunyogh, *Relativistic and thermal effects on the magnon spectrum of a ferromagnetic monolayer*, J. Phys.: Condens. Matter **25**, 506002 (2013).
- [II] L. Rózsa, L. Udvardi és L. Szunyogh, *Langevin spin dynamics based on ab initio calculations: numerical schemes and applications*, J. Phys.: Condens. Matter **26**, 216003 (2014).
- [III] L. Rózsa, L. Szunyogh és L. Udvardi, *Non-Collinear Magnetic Configurations at Finite Temperature in Thin Films*, IEEE Trans. Magn. **50**(11), 1300704 (2014).
- [IV] L. Rózsa, L. Udvardi, L. Szunyogh és I. A. Szabó, *Magnetic phase diagram of an Fe monolayer on W(110) and Ta(110) surfaces based on ab initio calculations*, Phys. Rev. B **91**, 144424 (2015).
- [V] L. Rózsa, E. Simon, K. Palotás, L. Udvardi és L. Szunyogh, *Complex magnetic phase diagram and skyrmion lifetime in an ultrathin film from atomistic simulations*, Phys. Rev. B **93**, 024417 (2016).

Egyéb tudományos közlemények:

- [VI] E. Simon, K. Palotás, L. Rózsa, L. Udvardi és L. Szunyogh, *Formation of magnetic skyrmions with tunable properties in PdFe bilayer deposited on Ir(111)*, Phys. Rev. B **90**, 094410 (2014).

Hivatkozások

K. von Bergmann, M. Bode és R. Wiesendanger, *Coverage-dependent spin reorientation transition temperature of the Fe double-layer on W(110) observed by scanning tunneling microscopy*, J. Magn. Mater. **305**, 279 (2006).

W. F. Brown, Jr., *Thermal Fluctuations of a Single-Domain Particle*, Phys. Rev. **130**, 1677 (1963).

- W. Kohn és N. Rostoker, *Solution of the Schrödinger Equation in Periodic Lattices with an Application to Metallic Lithium*, Phys. Rev. **94**, 1111 (1954).
- J. Korringa, *On the calculation of the energy of a Bloch wave in a metal*, Physica **13**, 392 (1947).
- N. Romming, C. Hanneken, M. Menzel, J. E. Bickel, B. Wolter, K. von Bergmann, A. Kubetzka és R. Wiesendanger, *Writing and Deleting Single Magnetic Skyrmions*, Science **341**, 636 (2013).
- L. Szunyogh, B. Újfalussy, P. Weinberger és J. Kollár, *Self-consistent localized KKR scheme for surfaces and interfaces*, Phys. Rev. B **49**, 2721 (1994).
- Kh. Zakeri, J. Prokop, Y. Zhang és J. Kirschner, *Magnetic excitations in ultrathin magnetic films: Temperature effects*, Surf. Sci. **630**, 311 (2014).