

Mágneses nanoszerkezetek első elvű  
szimulációi

PHD TÉZISFÜZET

BALOGH László

Témavezető: UDVARDI László

Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem

2017



## A kutatások háttere

A kísérleti eszközök, különösen a spin-polarizált pásztázó alagútmikroszkópia fejlődése lehetővé tette nem-kollineáris mágneses struktúrák atomi felbontású megfigyelését. [Bode et al., 2007]

Az átmeneti fém rendszerek mágneses tulajdonságait gyakran írjuk le effektív spin-modellekkel. [Nowak, 2007] Magasabb dimenziójú szerkezetekhez képest a nanostrukturákban a szimmetria alacsonyabb, emiatt sok különböző csatolási paraméter és magasabb rendű spin kölcsönhatások jelenhetnek meg. [Antal et al., 2008] Mágneses vékonyrétegek esetén az inverziós szimmetria sérül, amely a Dzyaloshinsky–Moriya (DM) kölcsönhatás megjelenéséhez vezet. A DM kölcsönhatás eredményeként olyan egzotikus mágneses mintázatok alakulhatnak ki, mint a mágneses *skyrmionok*. [Heinze et al., 2011] Mágneses nanostrukturákon végzett *ab initio* számítások sokat segíthetnek a kísérleti eredmények világosabb magyarázatában és a mögöttük lévő fizikai jelenségek jobb megértésében.

## Célkitűzések

Jelen munkában mágneses és nem mágneses hordozóra helyezett mágneses nanoszerkezeteket tanulmányoztunk elméleti módszerekkel első elvű számítások alapján. A tanulmányozott rendszerekben a spin-pálya csatolásnak (*spin-orbit coupling*, SOC) fontos szerepe van. Teljes relativisztikus elektronszerkezet számításokat használtunk, így a SOC-t nem-perturbatív módon vettük figyelembe. Bemutatjuk, hogy a relativisztikus hatások hogyan oldják fel a nem-relativisztikus alapállapot degenerációját.

Az 1. tézispontban bemutatjuk, hogy a nanoklaszterek mágneses szerkezetének teljesen *ab initio* alapú Monte Carlo (MC) szimulációja megvalósítható. Törekedtünk az első elvű leírás egy megfelelő spin modell leírással történő összehasonlítására.

Egy ferromágneses nanokontaktusra eső doménfal szerkezete érdekes viselkedést mutat. Calvo és mtsai. [Calvo et al., 2009] és Autès és mtsai. [Autès et al., 2008] 3d ferromágneses fém nanokontaktusokon végzett mérései motiválták a 2. tézispontban bemutatott Co nanokontaktus mágneses alapállapotát és mágneses anizotrópiáját célzó vizsgálatokat. A kontaktus ellentétesen mágnesezett ferromágneses Co tömbök között helyezkedett el. Azt találtuk, hogy a központi atom magneto-kristályos anizotrópia energiája (MAE) különbséget tesz a csavaros és a cikloidális doménfalak között. A MAE és a pályamomentum anizotrópiája között erős korrelációt várunk, hiszen mindkettő megjelenésének a SOC az közös oka. [Bruno, 1989] Ezt a korrelációt a MAE és a kobalt pontkontaktus központi atomjának pályamomentum anizotrópiájának numerikus tanulmányozása is megerősíti.

A frusztráció klasszikus példája az antiferromágnesesen csatolt szabályos háromszög, ahol lehetetlen mindhárom spinpárt egyidejűleg a legalacsonyabb energiájú állapotba állítani. Gao és mtsai. [Gao et al., 2008] mérései és Stocks és mtsai. [Stocks et al., 2007] és Antal és mtsai. [Antal et al., 2008] számításai motiválták az Au(111) felületre helyezett Cr trimerek kiralitásának és anizotrópiájának tanulmányozását. Az ellentétes kiralitású mágneses szerkezetek energiája különbözőnek adódott ahogyan Antal és mtsai. [Antal et al., 2008] is igazolták. Habár a Cr trimer Au(111) felületen egy széles körben tanulmányozott rendszer, [Antal et al., 2008, Bergman et al., 2007, Gotsis et al., 2006, Stocks et al., 2007] az értekezésben egy

---

új nézőpontból vizsgáltam meg. Az elméleti irodalomban általános megegyezés van afelől, hogy az alapállapot a síkban fekvő  $120^\circ$ -os Néel állapot. Nem-relativisztikus leírásban a különböző kiralitású és különböző tájolású síkban fekvő Néel konfigurációk egyforma energiájúak. Ezt a degenerációt a Dzyaloshinsky–Moriya és a pseudo-dipól kölcsönhatás oldja fel. Ennek a témának az eredményeit a 3. tézispontban mutatom be.

## Módszerek és eljárások

Számos elméleti eszköz érhető el a mágneses rendszerek elektron-szerkezetének meghatározása céljára. Az értekezésemben a Korringa–Kohn–Rostoker [Kohn and Rostoker, 1954, Korringa, 1947] módszert alkalmazom. Mágneses vagy nem-mágneses hordozóra (kobalt, réz, arany) helyezett nanoklaszterek (kobalt, króm) mágneses jellemzőit számítottam ki a KKR módszerrel összekapcsolt beágyazott klaszter Green-függvény módszerrel [Lazarovits et al., 2002, Lazarovits, 2003].

A klaszterekhez a szimmetriájuknak megfelelő klasszikus spin-modelleket alkottam. A spin-modell paramétereit közül néhányat meghatároztunk a nyomaték- [Liechtenstein et al., 1987, Udvardi et al., 2003] és a forgatási energia [Szunyogh et al., 2009, 2011] módszerével.

# Új eredmények.

## Tézispontok

Az értekezésem új eredményeit három tézispontban fogalmazom meg.

1. A KKR kód kiegészítésével egy teljesen *ab initio* Monte Carlo szimulációt valósítottam meg, és egy Cu(001) felületre helyezett  $4 \times 4$  Co atomból álló klaszter hőmérsékletfüggő mágnesezettségét számítottam ki. Ezen rendszer Heisenberg-modelljében az izotrop kicserélődési paramétert meghatároztam és egy becslést adtam az egytengelyű *on-site* anizotrópia paraméterre. A spin-modell alapú MC szimulációt összehasonlítottam a teljesen *ab initio* MC szimulációval. Azt találtam, hogy a két szimulációból kapott mágnesezettség görbék lényegében megegyeznek. A spin-modell alkalmazása megerősítést nyert. Az *ab initio* MC megközelítés előnye, hogy nem támaszkodik egy *a priori* spin-modellre, a hátránya pedig az igen nagy számítási igény.

**A II. publikáció** tartozik ehhez a tézisponthoz.

2. Ellentétesen mágnesezett Co tömbök közé helyezett Co pontkontaktus modelljének mágneses szerkezetét vizsgáltam *ab initio* számítások segítségével. Az erős ferromágneses csatolás és a szimmetria két különböző doménfal szerkezetet tesz lehetővé: csavaros (*helical wall*, HW) és cikloidális (*cycloidal wall*, CW) doménfalakat, ez utóbbi 30 meV-tal alacsonyabb energiájúnak adódott. A doménfalak szélessége követte a pontkontaktus hosszát  $-15\% \dots +15\%$ -nyi deformáció során. A központi atom hatalmas egytengelyű anizotrópiáját tapasztaltam,

---

amelynek a könnyű iránya a tömbökre merőleges irány, és amely a CW alacsonyabb energiájáért okolható. Kimutattam továbbá a központi atom pályamomentumának anizotrópiáját amely erősen korrelált a mágneses anizotrópia energiával.

A **III. publikáció** tartozik ehhez a tézisponthoz.

3. Au(111) felület *fcc hollow* és *hcp hollow* pozícióira helyezett szabályos kompakt Cr trimert vizsgáltam. A Cr atomok közötti antiferromágneses csatolás két lehetséges kiralitású, síkban fekvő,  $120^\circ$ -os Néel-állapotot eredményez. Az, hogy a két Néel-állapot közül melyik az alapállapot, a Dzyaloshinsky–Moriya (DM) kölcsönhatás és a *két-site* anizotrópia szimmetrikus része összjátékának az eredménye. A DM kölcsönhatás furmányosan függ a geometriától. Au(111) felületen elhelyezkedő Cr egyréteg esetében a DM csatolás véges  $z$ -komponense energiakülönbséget okoz az ellentétes kiralitású Néel-szerkezetek között.

Az **I.** és a **IV. publikáció** tartozik ehhez a tézisponthoz.

## Tézispontokhoz kapcsolódó publikációk listája

Az értekezés az alábbi cikkeket dolgozza fel. A publikációk időrendben szerepelnek a listában.

- [I] Antal, A., Lazarovits, B., Balogh, L., Udvardi, L. & Szunyogh, L. Multiscale studies of complex magnetism of nanostructures based on first principles. *Philosophical Magazine* **88**, 2715–2724 (2008). DOI: [10.1080/14786430802389213](https://doi.org/10.1080/14786430802389213).
- [II] Balogh, L., Lebecki, K. M., Lazarovits, B., Udvardi, L., Szunyogh, L., & Nowak, U. Monte Carlo study on magnetic nanoparticles from first principle. *Journal of Physics: Conference Series* **200**, 072103 (2010). DOI: [10.1088/1742-6596/200/7/072103](https://doi.org/10.1088/1742-6596/200/7/072103).
- [III] Balogh, L., Palotás, K., Udvardi, L., Szunyogh, L. & Nowak, U. Theoretical study of magnetic domain walls through a cobalt nanocontact. *Phys. Rev. B* **86**, 024406 (2012). DOI: [10.1103/PhysRevB.86.024406](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.86.024406).
- [IV] Balogh, L., Udvardi, L. & Szunyogh, L. Magnetic anisotropy and chirality of frustrated Cr nanostructures on Au(111). *Journal of Physics: Condensed Matter* **26**, 436001 (2014). DOI: [10.1088/0953-8984/26/43/436001](https://doi.org/10.1088/0953-8984/26/43/436001).



---

## Irodalomjegyzék

- A. Antal, B. Lazarovits, L. Udvardi, L. Szunyogh, B. Újfalussy, and P. Weinberger. First-principles calculations of spin interactions and the magnetic ground states of Cr trimers on Au(111). *Phys. Rev. B*, 77:174429, 2008. DOI: [10.1103/PhysRevB.77.174429](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.174429).
- G. Autès, C. Barreteau, M. C. Desjonquères, D. Spanjaard, and M. Viret. Giant orbital moments are responsible for the anisotropic magnetoresistance of atomic contacts. *Europhysics Letters*, 83:17010, 2008. DOI: [10.1209/0295-5075/83/17010](https://doi.org/10.1209/0295-5075/83/17010).
- Anders Bergman, Lars Nordström, Angela Burlamaqui Klautau, Sonia Frota-Pessôa, and Olle Eriksson. A first-principles study of the magnetism and electronic structure of Cr clusters supported on a Au(111) surface. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 19:156226, 2007. DOI: [10.1088/0953-8984/19/15/156226](https://doi.org/10.1088/0953-8984/19/15/156226).
- M. Bode, M. Heide, K. von Bergmann, P. Ferriani, S. Heinze, G. Bihlmayer, A. Kubetzka, O. Pietzsch, S. Blügel, and R. Wiesendanger. Chiral magnetic order at surfaces driven by inversion asymmetry. *Nature*, 447:190–193, 2007. DOI: [10.1038/nature05802](https://doi.org/10.1038/nature05802).
- Patrick Bruno. Tight-binding approach to the orbital magnetic moment and magnetocrystalline anisotropy of transition-metal monolayers. *Phys. Rev. B*, 39:865–868, 1989. DOI: [10.1103/PhysRevB.39.865](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.39.865).
- M. Reyes Calvo, Joaquín Fernández-Rossier, Juan José Palacios, David Jacob, Douglas Natelson, and Carlos Untiedt. The Kondo effect in ferromagnetic atomic contacts. *Nature (London)*, 458:1150–1153, 2009. DOI: [10.1038/nature07878](https://doi.org/10.1038/nature07878).

- C. L. Gao, W. Wulfhekel, and J. Kirschner. Revealing the  $120^\circ$  Antiferromagnetic Néel Structure in Real Space: One Monolayer Mn on Ag(111). *Phys. Rev. Lett.*, 101:267205, 2008.  
DOI: [10.1103/PhysRevLett.101.267205](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.267205).
- H. J. Gotsis, Nicholas Kioussis, and D. A. Papaconstantopoulos. Evolution of magnetism of Cr nanoclusters on Au(111): First-principles electronic structure calculations. *Phys. Rev. B*, 73:014436, 2006.  
DOI: [10.1103/PhysRevB.73.014436](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.73.014436).
- Stefan Heinze, Kirsten von Bergmann, Matthias Menzel, Jens Brede, André Kubetzka, Roland Wiesendanger, Gustav Bihlmayer, and Stefan Blügel. Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions. *Nat Phys*, 7:713–718, 2011.  
DOI: [10.1038/nphys2045](https://doi.org/10.1038/nphys2045).
- W. Kohn and N. Rostoker. Solution of the Schrödinger Equation in Periodic Lattices with an Application to Metallic Lithium. *Phys. Rev.*, 94:1111–1120, 1954. DOI: [10.1103/PhysRev.94.1111](https://doi.org/10.1103/PhysRev.94.1111).
- J Korringa. On the calculation of the energy of a Bloch wave in a metal. *Physica*, 13:392–400, 1947. DOI: [10.1016/0031-8914\(47\)90013-X](https://doi.org/10.1016/0031-8914(47)90013-X).
- B. Lazarovits, L. Szunyogh, and P. Weinberger. Fully relativistic calculation of magnetic properties of Fe, Co, and Ni adclusters on Ag(100). *Phys. Rev. B*, 65:104441, 2002. DOI: [10.1103/PhysRevB.65.104441](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.65.104441).
- Bence Lazarovits. *Electronic and magnetic properties of nanostructures*. PhD thesis, Technischen Universität Wien, 2003.
- A. I. Liechtenstein, M. I. Katsnelson, V. P. Antropov, and V. A. Gubanov. Local spin density functional approach to the theory of exchange interactions in ferromagnetic metals and alloys. *Journal of Magnetism and*

---

*Magnetic Materials*, 67:65–74, 1987.  
DOI: [10.1016/0304-8853\(87\)90721-9](https://doi.org/10.1016/0304-8853(87)90721-9).

U. Nowak. *Classical Spin Models*. John Wiley & Sons Ltd., Chichester, 2007. URN: [urn:nbn:de:bsz:352-opus-92390](https://nbn-resolving.org/urn:nbn:de:bsz:352-opus-92390).

G. Malcolm Stocks, M. Eisenbach, B. Újfalussy, B. Lazarovits, L. Szunyogh, and P. Weinberger. On calculating the magnetic state of nanostructures. *Progress in Materials Science*, 52:371–387, 2007.  
DOI: [10.1016/j.pmatsci.2006.10.015](https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2006.10.015).

L. Szunyogh, B. Lazarovits, L. Udvardi, J. Jackson, and U. Nowak. Giant magnetic anisotropy of the bulk antiferromagnets IrMn and IrMn<sub>3</sub> from first principles. *Phys. Rev. B*, 79:020403, 2009.  
DOI: [10.1103/PhysRevB.79.020403](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.79.020403).

L. Szunyogh, L. Udvardi, J. Jackson, U. Nowak, and R. Chantrell. Atomistic spin model based on a spin-cluster expansion technique: Application to the IrMn<sub>3</sub>/Co interface. *Phys. Rev. B*, 83:024401, 2011.  
DOI: [10.1103/PhysRevB.83.024401](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.83.024401).

L. Udvardi, L. Szunyogh, K. Palotás, and P. Weinberger. First-principles relativistic study of spin waves in thin magnetic films. *Phys. Rev. B*, 68:104436, 2003. DOI: [10.1103/PhysRevB.68.104436](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.68.104436).