



# Vékonyrétegek és nanoszerkezetek mágneses rendeződésének elméleti vizsgálata

PHD TÉZISFÜZET

NAGYFALUSI Balázs

Témavezető: UDVARDI László

Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem  
2024

# A kutatások előzménye

Az utóbbi évtizedek technológia alkalmazásaiban fontos szerepet játszanak a mágneses vékonyrétegek. Mágneses adattárolásban az információt a domének mágneses irányultsága adja, amihez kulcsfontosságú tulajdonság a mágneses anizotrópia. Síkra merőleges mágneses doméneket tartalmazó anyagok jelentősen növelik adatsűrűséget. Az első kereskedelemben is megjelent merőleges mágneses anizotrópiát (PMA) alkalmazó merevlemezt a Toshiba 2005-ben dobta a piacra [1]. A adatsűrűség további növeléséhez a domének méretének további csökkentése szükséges, ami magával vonja nagyobb anizotrópiával rendelkező anyagok használatát [2–4].

A mágneses anizotrópia energia (MAE) több járulék eredőjeként adódik. Kiemelkedő szerepet játszik a magnetokristályos anizotrópia (MCA) és az alakánizotrópia (SA), amelyek gyakran egymással ellentétes mágneses rendeződést preferálnak. Ezek a járulékok különböző módon reagálnak a rendszer vastagságának és hőmérsékletének változására a MAE előjelének megváltozáshoz vezetve. Ilyen esetekben a rendszerben spin reorientációs átalakulás mehet végbe, amely során a mágneses momentumok az új, kedvezőbb irányba fordulnak át [5, 6]. Az utóbbi években derült ki, hogy a Dzjalosinszkij–Moriya-kölcsönhatásnak (DMI) véges hőmérsékleten van egy dinamikus anizotrópia járuléka, amely beleszólhat ebbe a folyamatba [7].

Az elmúlt évtized fontos szilárdtestfizikai kutatási témája topológikus spin struktúrák, skyrmionok vizsgálata [8]. A modern technológia már lehetővé teszi azt is, hogy skyrmionokat egyesével létrehozzunk, mozgassunk és megsemmisítsünk [9], kvázirészecskéként tekintve rájuk. Apró méretük, kivételes stabilitásuk és mozgékony-ságuk tökéletes jelöltté teszik őket a nagy sűrűségű adattároló rendszerekben [10] vagy akár kvantumszámítógépekben való használatra is [11].

A kísérleti eszközök fejlődése lehetővé tette, hogy pásztázó alagút mikroszkóp tűjével egyesével mozgassunk atomokat a hordozó felületen [12], és így megnyílt az út a spin-láncok intenzív vizsgálata előtt. A nemmágneses hordozókra helyezett mágneses nanostruktú-

rák vizsgálata nagy lendületet vett a szupravezetők felületére helyezett nanoláncokban létrejövő Majorana kötött állapotok felfedezésének köszönhetően [13, 14], amelyeket a kvantumszámítógépek megvalósításának egy lehetséges módjának tartanak.

## Célkitűzések

A munkám során a fent bemutatott jelenségekkel foglalkoztam.

A kutatás egyik fő iránya mágneses vékonyrétegek hőmérsékletfüggő vizsgálata volt jól temperált metadinamika módszerrel. Ezeket a rendszereket klasszikus Heisenberg-spinként modelleztem. Elsőként modell rendszereken reprodukáltam a mágneses anizotrópia energia elvárt hőmérsékletfüggését [15], majd a spin reorientációs átalakulást vizsgáltam mono- és kettősrétegeken különös tekintettel a fázisátalakulás rendjére. Ezt követően két kísérletileg motivált rendszert vizsgáltam, Fe kettős- és hármasréteget Au(001) felületen, és Fe kettősréteget W(110) felületen. Ezeket a rendszereket első elvekből [16] származtatott csatolási paraméterekkel írtam le. Míg az előbbi rendszer esetén a kettős- és a hármasréteg közötti vastagságfüggő reorientációs átalakulás vizsgálata volt a cél, addig a  $\text{Fe}_2/\text{W}(110)$  esetén a hangsúly a hőmérsékletfüggő viselkedésen volt, különös tekintettel a DMI által indukált anizotrópia tag jelentőségére.

A PhD munkám fontos része volt a metadinamika kód továbbfejlesztése, hogy a mágneses vékonyrétegekben létrejövő topologikus struktúrákat is vizsgálni tudjam. A létrejövő skyrmionokat és antiskyrmionokat ( $\text{Pt}_{0.95}\text{Ir}_{0.05}$ )/Fe/Pd(111) és Pd/Fe/Ir(111) kettősrétegekben vizsgáltam. A rácsot jellemző topologikus töltés önmagában nem elegendő a különböző skyrmionok azonosítására. A konfiguráció alapos vizsgálatával a különféle objektumok azonban beazonosíthatóak. Ez lehetővé tette azt is, hogy meghatározzak a hőmérséklet és a külső mágneses tér függvényében egy olyan tartományt, ahol a skyrmionok szabad részecskéként viselkednek a rácson, és így képes voltam kiszámolni a kémiai potenciáljukat.

A kutatás másik fő iránya nemmágneses hordozókra helyezett

atomi Fe láncok mágneses szerkezetének a vizsgálata volt *ab initio* optimalálás segítségével. A Re(0001), Rh(111) és Nb(110) felületekre helyezett láncok vizsgálatának jelentőségét az adta, hogy így az alapállapotú mágneses rendeződést külön spin modell feltételezése nélkül, közvetlenül az elektronszerkezetből lehet meghatározni. A vizsgálataim kiterjedtek az elektronszerkezet számításban használt  $\ell_{\max}$  impulzusmomentumtérbeli levágás hatásának vizsgálatára, és a létrejövő konfigurációk összehasonlítására klasszikus kvadratikusspin modell számolásokon alapuló eredményekkel is.

## Módszerek

Az általam vizsgált rendszerek elektronszerkezetét a Korringa–Kohn–Rostoker-módszerrel (KKR) [16] határoztam meg.

A mágneses vékonyrétegek klasszikus Heisenberg-spin modellekkel írtam le [17, 18], és hőmérsékletfüggő tulajdonságaikat jól temperált metadinamika módszerrel vizsgáltam [19–21], ami lehetővé tette a szabadenergia-felület feltérképezését a fizikai problémától függő kollektív változó függvényében. Így képes voltam meghatározni mind a hőmérsékletfüggő mágneses anizotrópia energiát, amely a spin reorientációs átalakulások magyarázatában játszik kulcsszerepet, mind skyrmionszerű részecskék hőmérsékletfüggő kémiai potenciálját.

Az atomi láncok elektronszerkezetét a KKR-módszerben implementált beágyazott klaszter módszerrel [22] számoltam ki. A mágneses alapállapot *ab initio* optimalizálása során spinmodellek használata nélkül dolgoztam, közvetlenül összekapcsolva az elektronszerkezetet és az egyes spinekre ható forgatónyomaték minimalizálását.

# Új tudományos eredmények

A disszertációban megfogalmazott tudományos eredmények a következő tézispontokban foglalhatóak össze:

- I. A jól-temperált metadinamika módszert először mágneses vékonyrétegeket leíró modellt spin Hamiltonikra alkalmaztam. Megvizsgáltam a mágneses anizotrópia energia hőmérsékletfüggését tisztán on-site és tisztán két-site anizotrópiákra és jó egyezést találtam a mágneses anizotrópia energiára vonatkozó Callen–Callen-elmélettel. Azt találtam, hogy ez a két járulék különböző hőmérsékletfüggéssel bír, ami spin reorientációs átalakuláshoz vezethet azok versengése eredményeként. Ezt a jelenséget először egy monorétegen demonstráltam. Kettősrétegekre vonatkozóan a fázisátalakulások egy gazdagabb viselkedését találtam, vagyis a rendszer anizotrópiának megoszlásától függően első és másodrendű átalakulást is megfigyeltem.

Kapcsolódó publikáció: II.

- II.  $\text{Fe}_n/\text{Au}(001)$  ( $n=2, 3$ ) és  $\text{Fe}_2/\text{W}(110)$  rendszerek mágneses anizotrópiáját vizsgáltam jól temperált metadinamika módszerrel.

Az első rendszerhez kiszámoltam a mágneses kicserélődési paramétereket különböző Fe-Au réteg-réteg távolságokra, majd egy kiválasztottat használtam a szimulációkban a hőmérsékletfüggő mágneses anizotrópia energia kiszámolására. Megmutattam, hogy a Callen–Callen-elmélet teljesül erre a rendszerre is. A szabadenergia felületek vizsgálata megmutatta, hogy egy vastagságfüggő spin reorientációs átalakulás megy végbe  $n = 2$  és  $n = 3$  között.

A Dzjalosinszkij–Morija-kölcsönhatás alapvető szerepet játszik a  $\text{W}(110)$  felületre helyezett Fe kettősrétegben kialakuló spin reorientáció átalakulásban. Megmutattam, hogy véges hőmérsékleten egy további anizotrópia tag jelenik meg, amely a rendszerben megjelenő véges hőmérsékletű fluktuációkkal magyarázható. Bebizonyítottam, hogy a DMI nélkül a spin-reorientá-

ció nem ment volna végbe a rendszerben.

Kapcsolódó publikáció: I., II., III.

- III. Továbbfejlesztettem a jól-temperált metadinamika kódot, hogy képes legyen a topologikus töltést kollektív változóként használni. Ezzel a módosított verzióval vizsgáltam skymionszerű objektumok keletkezését és megsemmisülését nehézfémmel/vas, azaz  $(\text{Pt}_{0.95}\text{Ir}_{0.05})/\text{Fe}/\text{Pd}(111)$  és  $\text{Pd}/\text{Fe}/\text{Ir}(111)$  kettősrétegekben. Azt találtam, hogy alacsony hőmérsékleten részecskék kis sűrűsége esetén a skymionok és az antiskymionok részecskéként viselkednek, és így definálható a kémiai potenciáljuk. A véges hőmérsékletű kémiai potenciál görbék azt mutatták hogy a vizsgált  $(\text{Pt}_{0.95}\text{Ir}_{0.05})/\text{Fe}/\text{Pd}(111)$  kettősrétegben a skymionok és antiskymionok keletkezése is energetikailag kedvezőtlen, de  $\text{Pd}/\text{Fe}/\text{Ir}(111)$ -ben olyan mágneses térben, ahol az alapállapot térpolarizált azt találtam, hogy a skymionoknak negatív a kémiai potenciálja, azaz az adott  $B - T$  paraméterek mellett a térpolarizált háttérből való létrejöttük kedvező folyamat. Kapcsolódó publikáció: V.

- IV. *Ab initio* optimalizálást használtam különböző nehézfémmel hordozókra helyezett Fe láncok alapállapotú mágneses konfigurációján meghatározására. A Re hordozóra vonatkozó számítások rávilágítottak, hogy az elektronszerkezet-számításban használt impulzusmomentum-térbeli levágás megválasztása befolyásolhatja a mágneses struktúrát. Reprodukáltam a  $\text{Re}(0001)$  és  $\text{Nb}(110)$  felületekre helyezett Fe láncokban kísérletileg megfigyelt spinspirálállapotokat, a hullámhosszukban is jól mérhető egyezéssel. A  $\text{Rh}(111)$ -re helyezett Fe láncok széleskörű vizsgálata megmutatta, hogy a láncok illeszkedése a szubsztrát felületére befolyásolhatja a mágneses konfigurációt, és a spinmodell szimulációkkal való összehasonlítás megmutatta, hogy a kicserélődési csatolás egyes tagjai hogyan járulnak hozzá a mágneses konfiguráció kialakulásához. Kapcsolódó publikáció: IV.

# A tézispontokhoz kapcsolódó tudományos közlemények

A disszertációm a következő, időrendben felsorolt cikkek eredményeit tartalmazza:

- I. B. Nagyfalusi L. Udvardi and L. Szunyogh, *First principles and metadynamics study of the spin-reorientation transition in Fe/Au(001) films*, IOP Conf. Ser.: J. Phys. Conf. Ser. 903, 012016 (2017)
- II. Nagyfalusi, L. Udvardi and L. Szunyogh, *Metadynamics study of the temperature dependence of magnetic anisotropy and spin-reorientation transitions in ultrathin films*, Phys. Rev. B 100, 174429 (2019)
- III. B. Nagyfalusi, L. Udvardi L. Szunyogh, and L. Rózsa, *Spin reorientation in an ultrathin Fe film on W(110) induced by Dzyaloshinsky-Moriya interactions*, Phys. Rev. B 102, 134413 (2020)
- IV. B. Nagyfalusi, L. Udvardi and L. Szunyogh, *Magnetic ground state of supported monatomic Fe chains from first principles*, J. Phys. Cond. Mat. 34 395803 (2022)
- V. B. Nagyfalusi, L. Udvardi L. Szunyogh, and L. Rózsa, *Chemical potential of magnetic skyrmion quasiparticles in heavy metal/iron bilayers*, Phys. Rev. B.-be beküldve, bírálólat alatt, arxiv: 2312.05535 (2023)

## Hivatkozások

- [1] S. Iwasaki. „Perpendicular magnetic recording – Its development and realization –”. *Proc. the Jap. Ac. Ser. B* 85.2 (2009), 37–54. old. DOI: 10.2183/pjab.85.37.

- [2] I. Benguettat-El Mokhtari és tsai. „Perpendicular magnetic anisotropy and interfacial Dzyaloshinskii–Moriya interaction in as grown and annealed X/Co/Y ultrathin systems”. *J. Phys. Cond. Mat.* 32.49 (2020), 495802. old. DOI: 10.1088/1361-648x/abb0a8.
- [3] B. Tudu és A. Tiwari. „Recent Developments in Perpendicular Magnetic Anisotropy Thin Films for Data Storage Applications”. *Vacuum* (2017). DOI: 10.1016/j.vacuum.2017.01.031.
- [4] B. Dieny és M. Chshiev. „Perpendicular magnetic anisotropy at transition metal/oxide interfaces and applications”. *Rev. Mod. Phys.* 89 (2017), 25008. old. DOI: 10.1103/RevModPhys.89.025008.
- [5] U. Gradmann és J. Müller. „Flat Ferromagnetic, Epitaxial 48Ni/ 52Fe(111) Films of few Atomic Layers”. *Phys. status solidi (b)* 27.1 (1968), 313–324. old. DOI: 10.1002/pssb.19680270133.
- [6] P. J. Jensen és K. H. Bennemann. „Magnetic structure of films: Dependence on anisotropy and atomic morphology”. *Surf. Sci. Rep.* 61.3 (2006), 129–199. old. DOI: 10.1016/j.surfrep.2006.02.001.
- [7] L. Rózsa, U. Atxitia és U. Nowak. „Temperature scaling of the Dzyaloshinsky-Moriya interaction in the spin wave spectrum”. *Phys. Rev. B* 96 (2017), 94436. old. DOI: 10.1103/PhysRevB.96.094436.
- [8] Y. Tokura és N. Kanazawa. „Magnetic Skyrmion Materials”. *Chem. Rev.* 121.5 (2021), 2857–2897. old. DOI: 10.1021/acs.chemrev.0c00297.
- [9] N.s Romming és tsai. „Writing and Deleting Single Magnetic Skyrmions”. *Science* 341.6146 (2013), 636–639. old. DOI: 10.1126/science.1240573.



- [10] A. Fert, V. Cros és J. Sampaio. „Skyrmions on the track”. *Nat. Nanotechn.* 8.3 (2013), 152–156. old. DOI: 10.1038/nnano.2013.29.
- [11] C. Psaroudaki és C. Panagopoulos. „Skyrmion Qubits: A New Class of Quantum Logic Elements Based on Nanoscale Magnetization”. *Phys. Rev. Lett.* 127 (2021), 67201. old. DOI: 10.1103/PhysRevLett.127.067201.
- [12] R. Wiesendanger. „Spin mapping at the nanoscale and atomic scale”. *Rev. Mod. Phys.* 81 (4 2009), 1495–1550. old. DOI: 10.1103/RevModPhys.81.1495.
- [13] H. Kim és tsai. „Toward tailoring Majorana bound states in artificially constructed magnetic atom chains on elemental superconductors”. *Sci. Adv.* 4 (2018). DOI: 10.1126/sciadv.aar5251.
- [14] D. Crawford és tsai. „Majorana modes with side features in magnet-superconductor hybrid systems”. *npj Quantum Mater.* 7 (2022). DOI: 10.1038/s41535-022-00530-x.
- [15] H. B. Callen és E. Callen. „The present status of the temperature dependence of the magnetocrystalline anisotropy, and the  $l(l+1)^2$  power law”. *J. Phys. Chem. Sol.* 27.8 (1966), 1271–1285. old. DOI: 10.1016/0022-3697(66)90012-6.
- [16] L. Szunyogh, B. Újfalussy és P. Weinberger. „Magnetic anisotropy of iron multilayers on Au(001): First-principles calculations in terms of the fully relativistic spin-polarized screened KKR method”. *Phys. Rev. B* 51 (1995), 9552–9559. old. DOI: 10.1103/PhysRevB.51.9552.
- [17] U. Nowak. „Classical Spin Models”. *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials*. John Wiley & Sons, Ltd, 2007. ISBN: 9780470022184. DOI: 10.1002/9780470022184.hmm205.
- [18] L. Udvardi és tsai. „First-principles relativistic study of spin waves in thin magnetic films”. *Phys. Rev. B* 68 (2003), 104436. old. DOI: 10.1103/PhysRevB.68.104436.

- [19] A. Laio és M. Parrinello. „Escaping free-energy minima”. *Proceedings of the National Academy of Science* 99 (2002), 12562–12566. old. DOI: 10.1073/pnas.202427399.
- [20] A. Barducci, G. Bussi és M. Parrinello. „Well-Tempered Metadynamics: A Smoothly Converging and Tunable Free-Energy Method”. *Phys. Rev. Lett.* 100 (2008), 20603. old. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.020603.
- [21] J. F. Dama, M. Parrinello és G. A. Voth. „Well-Tempered Metadynamics Converges Asymptotically”. *Phys. Rev. Lett.* 112 (2014), 240602. old. DOI: 10.1103/PhysRevLett.112.240602.
- [22] B. Lazarovits, L. Szunyogh és P. Weinberger. „Fully relativistic calculation of magnetic properties of Fe, Co, and Ni adclusters on Ag(100)”. *Phys. Rev. B* 65 (2002), 104441. old. DOI: 10.1103/PhysRevB.65.104441.