

プロジェクト名(タイトル): Fe-Co 合金表面における絶縁体マトリックスの磁化に関する理論研究

利用者氏名: 〇隅田 真人

理研における所属研究室名: 革新知能統合研究センター 分子情報科学チーム

1. 本プロジェクトの研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

フッ化物絶縁体マトリックス中にナノメートルサイズの Fe-Co 合金の磁性粒子を分散させたナノグラニューラー膜は巨大な誘電率と磁気-誘電応答を示す透光性磁性材料(ファラデー回転子)として期待されている。ファラデー回転子は、入射偏光に対して透過偏光角度が変わる。この性質を利用することで、導波路型光アイソレータ、光サーキュレータ、光アイソレータおよび光サーキュレータを回路中に組み込んだ光集積基板、光電集積基板、光トランシーバまたはアイソレータ機能付きのレーザー光源モジュールなどとしての応用が期待できる。実用にむけた性能向上のためには、適切な絶縁体マトリックスを選ぶ必要がある。本研究では、適切な絶縁体マトリックス物質を選択・設計するための指針を獲得することを目的として、Fe-Co 合金と、いくつかのフッ化物絶縁体の界面を調べた。フッ化物には、既報のフッ化物絶縁体 (AlF_3 , MgF_2 , YF_3) を用い、Fe-Co 合金との界面モデルを作成し、密度汎関数分子動力学法 (DF-MD) により、界面の原子・電子の状態を調べた。

2. 具体的な利用内容、計算方法

量子力学に基づいた理論である密度汎関数法と分子動力学法を組み合わせた DF-MD を用いて、Fe-Co 合金とフッ化物絶縁体の界面モデルを作成した。DF-MD の計算には HOKUSAI でコンパイルされた cp2k (<https://www.cp2k.org>) を用いた。DF-MD における time step は 1.0 fs とし、密度汎関数法における汎関数には PBE を用い、平面波とガウシアンを組み合わせたハイブリッド基底を用いた。Fe-Co 合金表面はバルク Fe-Co 合金の 110 面を切り出した $(\text{FeCo})_{60}$ の板(スラブ)を用意した。この板の上・下面に、 $(\text{AlF}_3)_{10}$, $(\text{MgF}_2)_{10}$, $(\text{YF}_3)_{10}$ のクラスターを配置させた三つの系の初期構造をつくり、NVT アンサンブルで DF-MD 計算を行なった。

3. 結果

まず、バルク Fe-Co 合金のスピン多重度と実験との整合性から妥当な計算モデルを検討した。Fe と Co の間に電子のやり取りがなく、強磁性体であると仮定すると、固有状態を

維持しているものの、格子定数が実験値と大きく異なる。一方、Fe の d 軌道から一つ電子が、より電気陰性度の高い Co の d 軌道に移動した状態 (Fe^+Co^-) を仮定すると、理想的な固有状態に近く、実験の格子定数との違いも僅かであることがわかった。このバルク FeCo から $3 \times 3 \times 2$ 板を切り出し、 $(\text{FeCo})_{60}$ の 110 面の表面モデルを作った。この FeCo (110)面の板を用いて、 $(\text{AlF}_3)_{10}$, $(\text{MgF}_2)_{10}$, $(\text{YF}_3)_{10}$ との界面計算モデルを作り、それぞれ DF-MD 計算を流した。計算には 256 core を使用し、7 時間で 200 fs 程度進む。構造緩和を加速させるために、初期温度を 1000 K に設定し、1.0 ps ほど緩和させた。その後、800 K で計算を継続し、各系に対して計 20.0 ps ほど計算を流し、サンプルのために 10.0 ps ほどエネルギー平衡状態を用いた。

各界面で得られた構造からは、フッ化物クラスターがフッ素原子を経由して FeCo 表面に吸着している様子が見られる。電子状態的には、フッ化物クラスターが FeCo 合金によって還元され、フッ化物が金属様の電子状態を持っている。このことから、界面付近ではフッ化物はマイナスに帯電し、FeCo 合金はプラスに帯電し、極性を持っている状態になっている。またフッ化物はラジカル原子を持っていると考えられ、これが磁性の原因であると考えられる。つまりフッ化物は還元された際にスピン磁気モーメントを持つことが確約されるが、還元された際に、軌道磁気モーメントも上昇することが磁氣的性質の改善に重要であると予想できる。

4. まとめ

今回の Fe-Co 合金・フッ化物の界面の DF-MD 計算から、Fe-Co 合金はフッ化物によって酸化されることがわかった。このことから、Fe-Co 合金とフッ化物の界面は極性を持つ。また、絶縁体であったフッ化物は、不対電子を持ち、金属様電子状態になる。Fe-Co 合金とフッ化物によるナノグラニューラー膜が大きな磁気特性を持つ所以は、この Fe-Co とフッ化物の間の酸化還元反応によって生じた不対電子にあると思われる。

5. 今後の計画・展望

特許申請を終え、論文を投稿中です。