

Studi Teoritis Pembentukan Momen Magnetik pada *Alloy half-Heusler Mn₂Ge*

Anugrah Azhar^{1, †}, Muhammad Aziz Majidi²

¹Program Studi Fisika, Fakultas Sains dan Teknologi, Universitas Islam Negeri Syarif Hidayatullah Jakarta, Jalan Ir. H. Djuanda No.95, Cempaka Putih, Ciputat, Kota Tangerang Selatan, Banten 15412, Indonesia

²Departemen Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Indonesia, Jalan Margonda Raya, Pondok Cina, Beji, Kota Depok, Jawa Barat 16424, Indonesia

[†]anugrahazhar@uinjkt.ac.id

Abstrak. *Alloy Heusler* merupakan subkelas material yang terdiri dari paduan logam transisi dengan fenomena magnetik yang menarik karena nilai momen magnetiknya dapat diprediksi dengan menggunakan perhitungan sederhana yang dikenal dengan aturan Slater-Pauling (*SP rule*). Berdasarkan aturan SP, apabila jumlah elektron valensi dari material ini bernilai 18 (untuk *alloy half-Heusler*), momen magnetik material ini diprediksi akan bernilai $0 \mu_B$. Di sisi lain, material ini secara umum memiliki sifat *half-metal* dimana orientasi spinnya hanya terdapat di satu kanal spin saja. Berangkat dari motivasi ini, kami mengajukan studi teoritis untuk mempelajari pembentukan momen magnetik *alloy half-Heusler Mn₂Ge*. Hasil kami menunjukkan bahwa *Mn₂Ge* memiliki momen magnetik sebesar $0.03 \mu_B$ yang relative dekat dengan prediksi SP-rule dan berhasil menunjukkan fitur *half-metal* dari *Mn₂Ge*.

Kata Kunci: *alloy Heusler, half-metal, momen magnetik, Mn₂Ge.*

Abstract. *Heusler alloy is a subclass material that consists of transition metal compounds with fascinating magnetic properties due to their magnetic moment value can be predicted using a simple calculation called Slater-Pauling rule (SP rule). According to the SP rule, when the total number of the valance electron gives a value of 18 (for half-Heusler alloy), the magnetic momen of this material is predicted by the value of $0 \mu_B$. On the other hand, this material generally has half-metallic behavior in which the spin orientation only occurs on the one direction of spin channel. Starting from those issues, we propose a theoretical study to investigate the magnetic moment formation of half-Heusler alloy *Mn₂Ge*. Our results show that *Mn₂Ge* have magnetic moment of $0.03 \mu_B$ and show the half-metallic feature of *Mn₂Ge*.*

Keywords: *Heusler alloy, half-metallic, magnetic moment, Mn₂Ge*

PENDAHULUAN

Sejak awal ditemukan oleh Fritz Heusler pada awal abad ke 20 [1], *alloy Heusler* sampai saat ini masih banyak diteliti oleh para peneliti karena sifat materialnya yang menarik, terutama pada sifat magnetiknya yang dapat diprediksi menggunakan perhitungan sederhana yang dikenal sebagai aturan Slater-Pauling (*SP-rule*) [2]. Material ini secara umum memiliki sifat *half-metal* dimana orientasi spinnya hanya terdapat pada satu kanal spin saja. Karena sifat *half-metal*nya, hal ini menjadikan material ini sebagai salah satu kandidat untuk teknologi spintronic [3].

$$m = N_{vec} - 18. \quad (1)$$

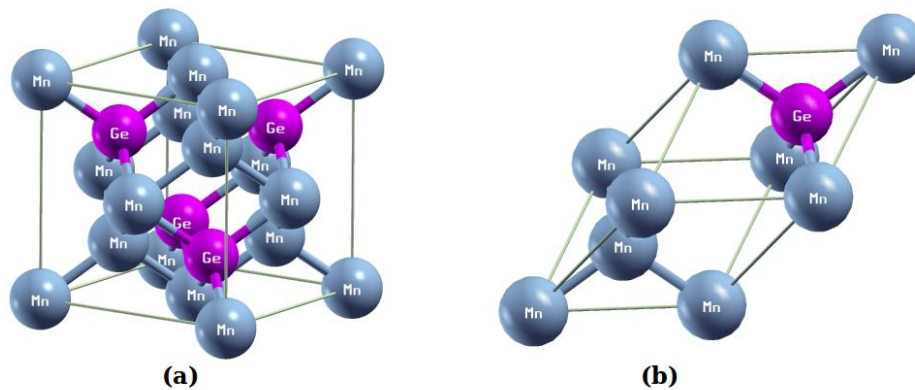
Persamaan (1) merupakan perhitungan *SP-rule* untuk *alloy half-Heusler*. Berdasarkan perhitungan momen magnet yang sangat sederhana di atas, hal ini memungkinkan seseorang untuk mensintesis material dengan nilai momen magnetik dapat diatur dengan cara memilih komposisi yang tepat material penyusunnya. Oleh karenanya, perhitungan secara *first-principle* banyak dilakukan terhadap subkelas material ini [4]–[6]. Hal yang menarik perhatian lainnya yakni, apabila jumlah electron valensi, N_{vec} , pada Persamaan (1) bernilai 18, maka momen magnet dari material tersebut akan bernilai nol, dan salah satunya dimiliki oleh *Mn₂Ge*. Di sisi lain, material *alloy Heusler* secara umum memiliki sifat *half-metal* yang berarti orientasi

spinnya hanya ada pada satu kanal spin saja. Dengan demikian, maka *alloy* Heusler dapat memiliki *net* momen magnet sebesar $0 \mu_B$ sekaligus memiliki sifat *half-metal*.

Berangkat dari isu tersebut, kami mengajukan studi teoritis pada material Mn_2Ge sebagai salah satu *alloy* Heusler yang diprediksi memiliki *net* momen magnetik sebesar $0 \mu_B$ dengan menggunakan model *tight-binding* berbasis perhitungan *first-principle* dan menerapkan koreksi suku interaksi Hubbard *inter-* dan *intra-orbital*, serta kopling Hund untuk orbital-*d* yang dilakukan dalam kerangka *Mean-Field Theory* (MFT). Kami melakukan perhitungan dengan menggunakan algoritma numerik Fortran 90/95 [7]. Untuk mempersingkat waktu komputasi, kami menerapkan skema perhitungan paralel menggunakan *Message Passing Interface* (MPI) [8].

MODEL

Mn_2Ge memiliki struktur kristal $C1_b$ dan menempati posisi Wyckoff di mana Mn (1), Mn (2), dan Ge berturut-turut $(0,0,0)$, $(0.25,0.25,0.25)$, dan $(0.75,0.75,0.75)$ seperti pada Gambar 1 [9].



Gambar 1. (a) Unit cell konvensional Mn_2Ge , (b) Unit cell primitif Mn_2Ge .

Sebelum melakukan perhitungan lebih lanjut, terlebih dahulu dilakukan penentuan basis orbital dari Mn_2Ge . Kami menyusun 24 basis orbital berdasarkan orbital dari masing-masing atom penyusun Mn_2Ge yang dapat dilihat pada Tabel 1.

Table 1. Basis orbital Mn_2Ge

Atom	Orbitals
Mn (1)	$ 3s\rangle, 3p_x\rangle, 3p_y\rangle, 3p_z\rangle, 4s\rangle$ $ 3d_{z^2}\rangle, 3d_{xy}\rangle, 3d_{xz}\rangle, 3d_{yz}\rangle, 3d_{x^2-y^2}\rangle$
Mn (2)	$ 3s\rangle, 3p_x\rangle, 3p_y\rangle, 3p_z\rangle, 4s\rangle$ $ 3d_{z^2}\rangle, 3d_{xy}\rangle, 3d_{xz}\rangle, 3d_{yz}\rangle, 3d_{x^2-y^2}\rangle$
Ge	$ 3s\rangle, 3p_x\rangle, 3p_y\rangle, 3p_z\rangle$

Hamiltonian yang kami ajukan mengandung 2 suku utama yakni suku non-interaksi (*bare*) dan suku interaksi [10]

$$\mathcal{H}_{total} = \mathcal{H}_{non} + \mathcal{H}_{int}. \quad (2)$$

Suku pertama dari Persamaan (2) nantinya akan diselesaikan dengan menggunakan pendekatan *tight-binding*. Persamaan (2) kemudian dapat diekspansi dalam bentuk

$$\mathcal{H}_{non} = \sum_{\mathbf{k}} \eta_{\mathbf{k}}^{\dagger} [H_0(\mathbf{k})] \eta_{\mathbf{k}}. \quad (3)$$

$\eta_{\mathbf{k}}^{\dagger}$ ($\eta_{\mathbf{k}}$) merupakan matriks kolom (baris) yang berisi operator kreasi (anihiliasi), sementara $[H_0(\mathbf{k})]$ merupakan matriks Hamiltonian yang elemen matriksnya dapat dijabarkan menjadi

$$\mathcal{H}_{0\ i,j}(\mathbf{k}) = \epsilon_i \delta_{i,j} - t_{i,j} \sum_{\delta_{nn}} e^{-i\mathbf{k} \cdot \delta_{nn}}. \quad (4)$$

- ϵ_i : Energi on-site orbital ke- i
- \mathbf{k} : vektor gelombang dalam zona Brillouin
- $t_{i,j}$: hopping integral antara orbital i dan j pada atom terdekat
- δ_{nn} : vektor translasi atom tetangga terdekat

Seluruh parameter *tight-binding* (ϵ_i dan $t_{i,j}$) diperoleh dengan terlebih dahulu melakukan perhitungan *Density Functional Theory* (DFT) menggunakan *Quantum Espresso package* [11] yang dilanjutkan dengan mengekstrak parameter-parameter *tight-binding* menggunakan *Wannier90 package* [12].

Suku ke-2 dari Persamaan (2) merupakan suku interaksi yang terdiri dari interaksi Coulomb repulsion inter- dan intra-orbital, serta kopling Hund antara orbital-d yang dapat ditulis sebagai berikut

$$H_{int} = \sum_{nia} U_{nia} \hat{n}_{nia\uparrow} \hat{n}_{nia\downarrow} + \sum_{n,m,i\alpha < \beta} \sum_{\sigma,\sigma'} \left(V_{(nia),(mj\beta)} - \frac{1}{2} J_{(nia),(mj\beta)} \right) \hat{n}_{nia\sigma} \hat{n}_{mj\beta\sigma'} - 2 \sum_{n,i,\alpha < \beta} J_{(nia),(mj\beta)} \vec{s}_{nia} \cdot \vec{s}_{mj\beta}. \quad (5)$$

- n, m : indeks unit cell
- i, j : indeks atom
- α, β : indeks orbital
- σ, σ' : indeks spin.

U , V , dan J berturut-turut merupakan Coulomb intra-orbital, Coulomb inter-orbital, dan Kopling Spin untuk orbital d. Keseluruhan perhitungan kemudian dieksekusi dengan menggunakan kode programming Fortran 90/95 dengan proses paralelisasi menggunakan MPI dalam kerangka *Mean-Field Theory*. Keseluruhan alur dari algoritma perhitungan dapat dilihat pada Gambar 2.

METODE

Penelitian ini menggunakan metode numerik untuk memperoleh besaran-besaran fisika menggunakan program Fortran 90/95. Sebelum melakukan perhitungan lebih lanjut, basis orbital pada tabel 1 yang merupakan elemen matriks dari matriks Hamiltonian, $[H_0(\mathbf{k})]$. Matriks $[H_0(\mathbf{k})]$ dalam Persamaan (3) mengandung blok matriks berukuran 24×24 untuk spin-up, $[H_0(\mathbf{k})]_{\uparrow}$, dan 24×24 untuk spin down, $[H_0(\mathbf{k})]_{\downarrow}$.

$$[H_0(\mathbf{k})] = \begin{bmatrix} [H_0(\mathbf{k})]_{\uparrow} & 0 \\ 0 & [H_0(\mathbf{k})]_{\downarrow} \end{bmatrix}, \quad (6)$$

Untuk perhitungan lebih lanjut, kami mendefinisikan fungsi Green *retarded* yang dapat dinyatakan dalam bentuk matriks sebagai

$$[G^R(\vec{k}, \omega)] = \left[(\omega + i0^+) [I] - [H_0(\vec{k})] - [\Sigma] \right]^{-1}. \quad (7)$$

Density of States (DOS) sistem dapat dihitung dengan menggunakan persamaan berikut

$$\text{DOS}(\omega) = -\frac{1}{\pi} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \text{Im Tr}[G^R(\mathbf{k}, \omega)]. \quad (8)$$

Kemudian, untuk menghitung nilai momen magnetik dari sistem diperoleh dengan menghitung selisih dari jumlah spin-up dan spin-down.

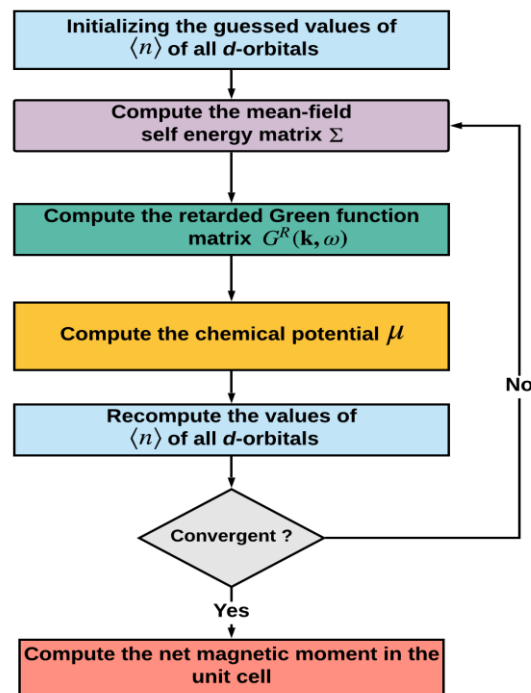
$$m = (n_{\uparrow} - n_{\downarrow}) \mu_B. \quad (9)$$

Dengan $n_{\uparrow(\downarrow)}$ diperoleh menggunakan persamaan berikut

$$n_{\uparrow(\downarrow)} = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \text{DOS}_{\uparrow(\downarrow)}(\omega) f(\omega, \mu, T), \quad (10)$$

di mana $f(\omega, \mu, T)$ merupakan fungsi distribusi Fermi.

$$f(\omega, \mu, T) = \frac{1}{e^{\frac{(\hbar\omega - \mu)}{k_B T}} + 1} \quad (11)$$

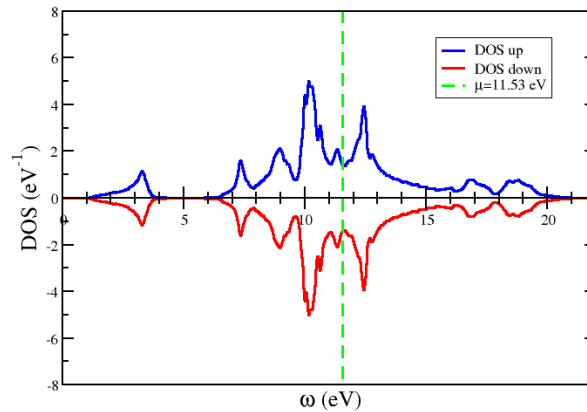


Gambar 2. Algoritma Mean-Field Theory

HASIL DAN PEMBAHASAN

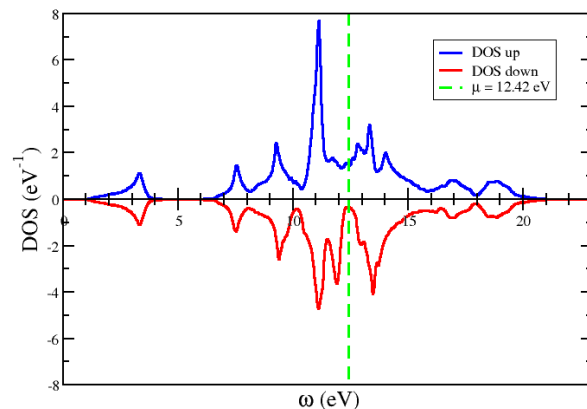
Density of States (DOS)

non-interacting DOS (*Bare* DOS) yang diperoleh dengan menggunakan persamaan (7) dihitung menggunakan grid *k-point* sebanyak $20 \times 20 \times 20$. Perhitungan *bare* DOS dimaksudkan untuk mengetahui fitur awal DOS dan potensial kimia dari Mn_2Ge sebelum diberikan interaksi.



Gambar 3. Bare DOS alloy half-Heusler Mn_2Ge

Gambar 3 menunjukkan bahwa DOS untuk *majority* dan *minority* spin berada pada keadaan yang sama yang menandakan bahwa belum adanya interaksi. Potensial kimia pada *bare* DOS bernilai 11.53 eV. Setelah fitur *bare* DOS dari Mn_2Ge sesuai dengan yang diharapkan, langkah selanjutnya adalah melakukan perhitungan dengan mengimplementasikan suku interaksi yang dikumpulkan dalam matriks *self-energy*, $[\Sigma]$, yang terdiri atas suku Coulomb *intra-* dan *inter-orbital*, serta kopling Hund antara orbital-d. Adapun DOS dari Mn_2Ge setelah diberikan suku interaksi dapat dilihat pada gambar berikut.



Gambar 4. Interacting DOS alloy half-Heusler Mn_2Ge .

Gambar 4 menunjukkan bahwa spin-up dan spin-down dari Mn_2Ge mengalami perubahan yang sangat signifikan, yang diikuti dengan pergeseran potensial kimia yang semula bernilai 11.53 eV menjadi 12.42 eV. Pada Gambar 4, nilai potensial kimia Mn_2Ge berada pada band untuk kanal spin-up, sementara pada spin-down berada pada gap. Hal ini menunjukkan bahwa Mn_2Ge bersifat *half-metal* yang berasal dari interaksi antara orbital-d pada atom-atom Mn [13].

Momen Magnetik

Nilai momen magnetik yang kami peroleh berdasarkan hasil perhitungan yakni sebesar $0.03 \mu_B$. Nilai ini relatif cukup dekat dengan prediksi dari *SP-rule* yakni $0.00 \mu_B$. Adapun nilai momen magnetik kontribusi dari masing-masing atom penyusun Mn_2Ge disajikan pada tabel berikut.

Tabel 2. Momen magnetik per atom

Atom	Magnetik momen (μ_B)
Mn (1)	-175
Mn (2)	1.65
Ge	0.06

Tabel 2 menunjukkan nilai momen magnetik masing-masing dari atom penyusun Mn_2Ge . Dari nilai yang diperoleh pada Tabel 2, terlihat bahwa atom Mn (1) dan Mn (2) memiliki nilai yang hampir sama besar, namun saling berlawanan tanda. Hal ini mengindikasikan bahwa sistem ini cenderung untuk membentuk anti-feromagnetik *ordering*. Karena sistem ini membentuk anti-feromagnetik *ordering* di mana antara spin-up dan spin-down saling meniadakan, dan membuat *net* momen magnetiknya bernilai ~ 0 . Hal ini didukung pula oleh kenyataan bahwa nilai momen magnetik Mn_2Ge berdasarkan SP-rule bernilai $0 \mu_B$.

KESIMPULAN

Kami telah berhasil membuat model teoritis *tight-binding* berbasis perhitungan *first-principle* dengan menambahkan interaksi Coulomb *intra-* dan *inter-orbital* serta interaksi Hund yang dieksekusi dalam kerangka MFT. Berdasarkan hasil yang diperoleh, nilai momen magnet dari Mn_2Ge bernilai $0.03 \mu_B$ yang nilainya dekat dengan prediksi SP-rule yakni sebesar $0.00 \mu_B$. Hasil perhitungan kami berhasil pula menunjukkan fitur *half-metal* dari Mn_2Ge .

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis berterima kasih kepada fasilitas *high-performance computing* LIPI atas dukungannya terhadap riset ini. URL <http://grid.lipi.go.id>.

REFERENSI

- [1] F. Heusler and Verh, "No Title," *DPG*, vol. 5, p. 220, 1903.
- [2] C. Felser, G. H. Fecher, and B. Balke, "Spintronics: A challenge for materials science and solid-state chemistry," *Angew. Chemie - Int. Ed.*, vol. 46, no. 5, pp. 668–699, 2007.
- [3] T. Graf, C. Felser, and S. S. P. Parkin, "Simple rules for the understanding of Heusler compounds," *Prog. Solid State Chem.*, vol. 39, no. 1, pp. 1–50, 2011.
- [4] N. Zheng and Y. Jin, "Band-gap and Slater–Pauling rule in half-metallic Ti₂-based Heusler alloys: A first-principles study," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 324, no. 19, pp. 3099–3104, Sep. 2012.
- [5] M. A. Zagrebin, V. V. Sokolovskiy, V. D. Buchelnikov, and M. A. Klyuchnikova, "First Principles Investigation of Magnetic Properties of Fe-Ni-Mn-Al Heusler Alloys," 2015.
- [6] T. Gasi *et al.*, "Iron-based Heusler compounds Fe₂YZ: Comparison with theoretical predictions of the crystal structure and magnetic properties," *Phys. Rev. B*, vol. 87, no. 6, p. 064411, Feb. 2013.
- [7] "Fortran 90 — Fortran90 1.0 documentation." [Online]. Available: <https://www.fortran90.org/>. [Accessed: 28-Jan-2019].
- [8] "MPI: A Message-Passing Interface Standard," 2015.
- [9] A. Kokalj, "Computer graphics and graphical user interfaces as tools in simulations of matter at the atomic scale," *Comput. Mater. Sci.*, vol. 28, no. 2, pp. 155–168, Oct. 2003.
- [10] A. Azhar, M. A. Majidi, and D. Nanto, "Modeling of full-Heusler alloys within tight-binding approximation: Case study of Fe₂MnAl ARTICLES YOU MAY BE INTERESTED IN Modeling of half-Heusler compound NiMnSb within tight-binding approximation AIP Conference Modeling of Full-Heusler Alloys within Tight-Binding Approximation: Case Study of Fe₂MnAl," vol. 1862, p. 30020, 2017.
- [11] P. Giannozzi *et al.*, "QUANTUM ESPRESSO: a modular and open-source software project for quantum simulations of materials," *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 21, no. 39, p. 395502, Sep. 2009.
- [12] N. Marzari and D. Vanderbilt, "Maximally localized generalized Wannier functions for composite energy bands," *Phys. Rev. B*, vol. 56, no. 20, pp. 12847–12865, Nov. 1997.
- [13] X. Wang *et al.*, "Origin of the half-metallic band-gap in newly designed quaternary Heusler compounds ZrVTiZ (Z = Al, Ga)," *RSC Adv.*, vol. 6, no. 62, pp. 57041–57047, 2016.