

# 反钙钛矿型 $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$ 的高自旋极化率 和弱垂直磁各向异性\*

张兴媛# 陈喆# 史晓慧† 许林哲 张升昊  
陈建华 郇成志 谢雨欣

(临沂大学物理与电子工程学院, 临沂 276000)

(2025 年 12 月 18 日收到; 2026 年 1 月 24 日收到修改稿)

$\text{Fe}_4\text{N}$  具有高居里温度、大饱和磁化强度和良好的稳定性等优点, 在自旋电子器件中得到广泛应用. 然而,  $\text{Fe}_4\text{N}$  的面内磁各向异性限制了其在下一代自旋电子器件中的进一步发展. 5d 过渡金属 Pt 具有强自旋轨道耦合 (SOC) 效应, 通过 Pt 掺杂可实现对  $\text{Fe}_4\text{N}$  磁学性能的有效调控. 本工作采用基于密度泛函理论的第一性原理计算, 系统探究了  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  ( $c$  为顶角原子位置) 的电子结构与磁学特性, 并与考虑 SOC 的计算结果进行对比. 研究表明,  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  仍保持立方反钙钛矿结构, 且具备良好的金属特性与磁性. 由于 SOC 作用的存在,  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的总磁矩从  $8.18\mu_B$  (不考虑 SOC) 增至  $8.47\mu_B$ . 此外,  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的自旋极化率为  $-70.4\%$ , 绝对值是母体  $\text{Fe}_4\text{N}$  ( $-47.9\%$ ) 的 1.47 倍. 进一步研究发现,  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的总磁晶各向异性能量密度约为  $-0.003\text{ J/cm}^3$ , 表现为弱垂直磁各向异性 (PMA). 综上,  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  具备大磁矩、高自旋极化率和弱 PMA 等特点, 在新一代多场调控的自旋电子器件领域展现出重要的应用潜力, 可为该领域发展提供新的材料选择与理论支撑.

**关键词:**  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$ , 高自旋极化率, 磁矩, 弱垂直磁各向异性, 自旋-轨道耦合

**DOI:** 10.7498/aps.75.20251733

**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251733

## 1 引言

在信息技术高速更新的背景下, 数据存储领域对器件的要求不断提高. 自旋电子器件凭借高灵敏度、低功耗及其柔性特质, 成为破解这一难题的重要方向之一. 1988 年, Baibich 等<sup>[1]</sup> 在 (001)Fe/(001)Cr 超晶格中首次发现了巨磁电阻 (GMR) 效应, 这一里程碑式的发现不仅开创了自旋电子学这一新兴领域, 更突破了传统电子学仅依赖电荷属性的局限, 将电子的自旋自由度引入信息存储与传输的核心. GMR 效应所展现的显著磁电阻变化, 推动了

对磁性多层膜自旋输运特性的深入研究, 进而催生了隧道磁电阻 (TMR) 效应的发展<sup>[2,3]</sup>. 与 GMR 相比, TMR 效应凭借更高的磁电阻比值、更低的工作能耗及更高的磁场灵敏度<sup>[4]</sup>, 成为磁随机存储器 (MRAM) 的核心工作原理. 磁性材料因其低能耗、高自旋极化率和高速度特性, 在 GMR 传感器<sup>[5]</sup>, TMR 传感器<sup>[6]</sup> 和 MRAM<sup>[7]</sup> 等新型自旋电子学器件中展现出广阔应用前景.

反钙钛矿型氮化物具有特殊的晶体结构与可调控的磁学性质, 是一类多功能材料, 在磁性材料领域显现出良好的应用潜力. 反钙钛矿氮化物通用化学式为  $X_3AB$ ,  $X$  为过渡金属,  $A$  为角金属原子,

\* 国家自然科学基金 (批准号: 52201220)、山东省自然科学基金 (批准号: ZR2022QA052) 和临沂大学大学生创新创业计划训练项目 (批准号: X2025104520503) 资助的课题.

# 同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: shixiaohui@lyu.edu.cn

$B$ 为通常为 N, O 等非金属元素<sup>[8,9]</sup>. 反钙钛矿氮化物凭借 GMR、垂直磁各向异性 (PMA) 和磁热效应等突出磁学性能, 在磁存储和传感器领域中被广泛应用<sup>[10]</sup>.  $\text{Fe}_4\text{N}$  具有高磁化强度 ( $1440 \text{ emu/cm}^3$ )、较高的居里温度 (767 K)、耐磨性和耐腐蚀性等优异性能, 被认为是一种很有前途的自旋电子器件材料<sup>[11]</sup>. 磁各向异性和自旋极化率是影响自旋电子器件中铁磁性电极材料性能的关键参数. 从应用角度分析, PMA 有助于降低存储单元的翻转能耗; 同时, 电极的磁化特性与高自旋极化率共同决定磁隧道结的 TMR 大小, 这对提升 MRAM 的性能至关重要. 然而,  $\text{Fe}_4\text{N}$  的面内磁各向异性 (IMA,  $2.9 \times 10^{-2} \text{ J/cm}^3$ ) 和较低的自旋极化率 ( $-47.9\%$ ) 限制了其在下一代自旋电子器件方面的进一步发展<sup>[12,13]</sup>. 因此, 我们提出通过原子掺杂对  $\text{Fe}_4\text{N}$  的电子结构与磁学性质进行调控, 以期获得兼具高自旋极化率和 PMA 的新型功能材料. 为了改善铁磁材料的自旋极化率和诱导 PMA, 研究人员对  $\text{Fe}_4\text{N}$  开展了多种过渡金属元素以及稀土元素的掺杂研究<sup>[14,15]</sup>. Gil Rebaza 等<sup>[16]</sup> 采用全势线性化增广平面波方法研究了  $M\text{Fe}_3\text{N}$  中 3d 过渡金属  $M$  的原子占位和晶格常数的变化. 研究发现平衡晶格参数随  $M$  原子的原子序数呈振荡性变化, 表明二者之间无相关性. Monachesi 等<sup>[17]</sup> 通过第一性原理计算研究发现, Mn 掺杂在  $\text{Fe}_1$  位点会使  $\text{Fe}_4\text{N}$  的总磁矩增大. Von Appen 和 Dronskowski<sup>[18]</sup> 通过全能量密度泛函理论研究了 Rh, Ir, Pd 和 Pt 等 9 种原子掺杂  $\text{Fe}_4\text{N}$  中的原子优先占位情况. 研究表明大原子尺寸的重原子 Rh, Ir, Pd 和 Pt 更倾向于占据  $\text{Fe}_4\text{N}$  的顶角位置. 此外, 元素的原子序数越大, 其自旋-轨道耦合 (SOC) 作用通常越强. SOC 的引入能够诱导材料产生诸多新奇的物理现象, 例如由 SOC 调控的绝缘-金属<sup>[19]</sup> 转变, 以及对磁光效应的调制作用<sup>[20]</sup> 等. 相比于 3d 过渡金属 Fe, Pt 作为重金属元素具有较强的 SOC 效应, 将其掺杂到  $\text{Fe}_4\text{N}$  有助于增强体系整体的 SOC 强度, 从而实现对材料电子结构与磁学性质的调控.

当  $\text{Fe}_4\text{N}$  顶角位的  $\text{Fe}_1$  原子被 Pt 原子掺杂取代时, 即可得到  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  ( $c$  为顶角原子位置). 在理论研究方面, Music 和 Schneider<sup>[21]</sup> 发现  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  具有较高的体弹模量  $B$  与弹性常数  $C_{44}$  的比值 (2.9), 这一特性源于 Fe-N 层内存在强耦合作用. Matar 等<sup>[22]</sup> 采用增广球面波方法计算得出, 当压

力达到临界值  $P_c = 764 \text{ kbar}$  时,  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的磁矩会降至零. 实验研究方面, Wiener 和 Berger<sup>[23]</sup> 早在 1955 年便通过真空熔炼母合金, 再经渗氮和退火处理, 成功制备出  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$ . 目前关于  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的实验研究多集中于电催化性能领域. 例如, Fe-Pt 合金纳米催化剂可显著提升燃料电池中氧还原反应的活性<sup>[24]</sup>; Han 等<sup>[25]</sup> 采用原位限域迁移策略, 实验制备出一种新型高效催化剂  $\text{PtFe}_3/\text{CN}$ , 该催化剂对烯烃水解反应的转化数高达约 740000; Ding 等<sup>[26]</sup> 通过浸渍还原法制备出  $\text{PtFe}_3\text{N}/\text{C}$  核壳结构电催化剂, 该催化剂兼具低成本与高催化活性的优势. 目前, 关于  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的实验研究主要集中于电催化领域, 理论计算则多聚焦于压力、弹性等机械性能相关研究; 而其本身的电子结构与磁学性质的相关研究相对较少, 在自旋电子器件领域的潜在应用价值也尚未得到充分发掘与关注. 因此, 本研究旨在通过第一性原理计算研究 Pt 掺杂后对  $\text{Fe}_4\text{N}$  电子结构和磁学性质的影响, 为反钙钛矿型氮化物在自旋电子领域的应用拓展提供材料体系参考.

本文基于 DFT 的第一性原理计算, 研究了  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的晶体结构、能带、磁矩、自旋极化率及磁晶各向异性等. 声子谱和分子动力学模拟的研究表明,  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  具有动力学和热力学稳定性. 能带结构计算结果表明,  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  兼具金属性与磁性特征. 尽管重金属 Pt 原子具有较强 SOC 作用, 但其对  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的能带结构并未产生显著影响. 在不考虑 SOC 的情况下,  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  体系的总磁矩为  $8.18\mu_B$ , 而考虑 SOC 后体系的总磁矩提升至  $8.47\mu_B$ , 这主要归因于  $\text{Fe}_{\parallel}$  和 Pt 原子分别贡献了  $0.06\mu_B$  和  $0.14\mu_B$  的轨道磁矩. 这一结果表明, SOC 对  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  体系的磁性具有不可忽视的调控作用.  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的自旋极化率为  $-70.4\%$ , 绝对值是母体  $\text{Fe}_4\text{N}$  的 1.47 倍. 此外,  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  呈现弱 PMA.  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的高自旋极化率表明其性能表现能够匹配自旋电子器件对核心磁性材料的关键需求, 也为反钙钛矿型氮化物在自旋电子领域的应用拓展提供了具有针对性的材料体系参考.

## 2 计算方法

本研究所有计算均通过维也纳从头算模拟包 (VASP) 进行<sup>[27]</sup>, 以精准描述  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的电子结

构和磁学特性. 处理交换关联势时, 选用广义梯度近似 (GGA)<sup>[28]</sup> 框架下的 PBE (Perdew-Burke-Ernzerhof)<sup>[29,30]</sup> 泛函. 计算统一采用 500 eV 作为平面波能量截止值, 能量与力的收敛判据分别设定为  $5 \times 10^{-6}$  eV/Å 和 0.001 eV/Å<sup>[31]</sup>. 布里渊区的 *K* 点网格选取为  $13 \times 13 \times 13$ <sup>[32]</sup>. 结构优化运用准牛顿算法, 依据原子受力动态调整其位置直至满足收敛标准, 优化后的结构用于后续分析. 电子态密度 (DOS) 和磁各向异性 (MAE) 的计算采用共轭梯度算法, *K* 点网格提升至  $21 \times 21 \times 21$ . 磁各向异性能 (MAE) 的计算考虑了自旋轨道耦合 (SOC) 效应, 其值按  $MAE = E[001] - E[100]$  计算 ( $E[001]$ ,  $E[100]$  分别对应自旋沿 [001], [100] 方向时的能量), 其中正值代表面内磁各向异性 (IMA), 负值代表 PMA. 声子谱通过 PHONOPY 程序包<sup>[33]</sup> 计算, 采用  $2 \times 2 \times 2$  超晶胞, *K* 点设置为  $3 \times 3 \times 3$ <sup>[34]</sup>. 此外, 常温常压条件下的从头算分子动力学 (AIMD) 模拟采用  $3 \times 3 \times 3$  超胞, *K* 点设为  $1 \times 1 \times 1$ <sup>[35]</sup>, 模拟温度为 300 K. 由于 Pt 属于 5d 重金属元素, 所以本研究引入 Hubbard *U* 参数, 通过 GGA+*U* 方法修正强关联电子效应引发的库仑相互作用<sup>[36,37]</sup>. 通过线性响应近似法对  $U_{\text{eff}}(U-J)$  值进行测试, 如图 1 所示. 通过设置不同的 *U* 值与 *J* 值 ( $U = J$ ), 对 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 分别开展了自洽 (scf) 计算与非自洽 (nscf) 计算. 图 1 展示了 Pt 原子的 d 轨道电子能量随 *U* 值与 *J* 值变化的演变规律.  $U_{\text{eff}}$  值可通过 (1) 式计算得出<sup>[38]</sup>:

$$U_{\text{eff}} = \chi^{-1} - \chi_0^{-1}, \quad (1)$$

式中,  $\chi$  代表自洽曲线的斜率,  $\chi_0$  代表非自洽曲线的斜率. 通过自洽计算得到的 Pt 原子的 d 轨道电子能量变化曲线的斜率为 0.27; 而通过非自洽计算得到的斜率为 0.66. 通过 (1) 式计算得到的  $U_{\text{eff}}$

为 2.18 eV. 此外, 由于含有 5d 电子轨道的过渡金属元素 Pt 原子的存在, 因而理论计算中还考虑了 SOC 作用对 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的电子结构和磁性质的影响.

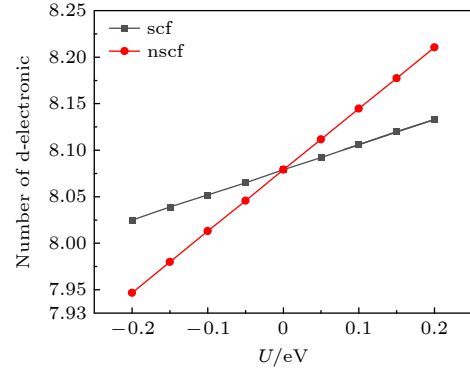


图 1 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的  $U_{\text{eff}}$  值选取的测试  
Fig. 1. Test for the selection of  $U_{\text{eff}}$  values of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N.

### 3 结果与讨论

#### 3.1 晶体结构

Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 是由 Pt, Fe 和 N 三种原子构成的立方反钙钛矿型氮化物. Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的空间群为  $Pm\bar{3}m$ , 具有体心立方晶体结构. 该结构由 Fe<sub>4</sub>N 顶端的 Fe<sub>I</sub> 原子被 Pt 原子取代形成, 如图 2 所示. 其中 N 原子位于立方结构的体心位置, Fe<sub>IIAa</sub>, Fe<sub>IIAb</sub> 和 Fe<sub>IIB</sub> 原子分别处于 *a* 轴、*b* 轴和 *c* 轴的面心位置, Pt 原子位于顶角位置, 如图 2(b) 所示. 由于具有立方对称性, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 面心位置的铁原子 (Fe<sub>IIAa</sub>, Fe<sub>IIAb</sub> 和 Fe<sub>IIB</sub>) 完全等效<sup>[39]</sup>. 第一性原理计算结果显示, 原始 Fe<sub>4</sub>N 的晶格常数为 3.795 Å<sup>[40]</sup>, 而 Pt 掺杂后形成的 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 其晶格常数增至 3.856 Å, 与其他文献中的结果 (3.853 Å<sup>[21]</sup>, 3.857 Å<sup>[41]</sup>) 相近.

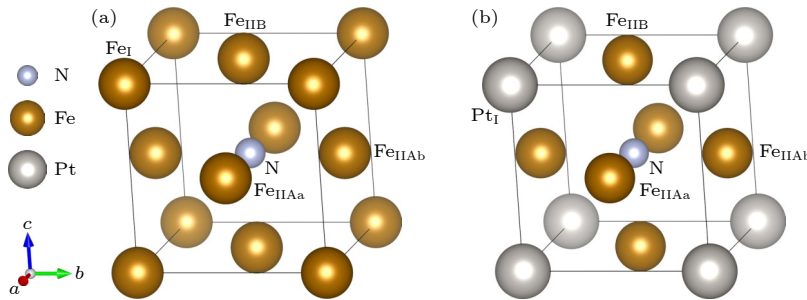


图 2 (a) Fe<sub>4</sub>N 和 (b) Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 晶体结构  
Fig. 2. Crystal structure of (a) Fe<sub>4</sub>N and (b) Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N.

### 3.2 动力学和热力学稳定性

由图 3(a) 中的声子谱可知, 在整个布里渊区范围内, 所有频率曲线均为正值, 未出现虚频, 表明 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 具有动力学稳定性<sup>[42,43]</sup>, 该结果说明材料中原子在晶格中的振动模式不会引发结构自发失稳. 进一步结合图 3(b) 分析, 300 K 恒温条件下, 体系总能量在 0—10000 fs 的模拟时长内逐渐收敛并趋于平稳, 未观察到明显的能量漂移或骤变现象, 这表明 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 具有热力学稳定性, 原子间的相互作用能够使结构在热扰动下维持稳定. 因此, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 在动力学和热力学方面均表现出良好的稳定性.

### 3.3 电子结构与磁学性质

#### 3.3.1 能带

考虑到 Pt 原子具有显著的 SOC 效应, 基于第一性原理计算获得了考虑 SOC 效应的能带结构, 如图 4(a) 所示. 在计算中, 能带表现为自旋在 *z* 轴上的投影分量. 结果显示, 加入 SOC 后 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N

的能带并没有发生显著变化. 有无 SOC 的能带在布里渊区各高对称路径上的分布趋势基本一致. 所以为了便于对比 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 与 Fe<sub>4</sub>N, 采用未考虑 SOC 的自旋极化计算的能带进行分析. 图 4(b), (c) 呈现了 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 和 Fe<sub>4</sub>N 的自旋向上和自旋向下能带的分布情况. 可以看到, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 和 Fe<sub>4</sub>N 导带最小和价带最大处的能带穿过费米能级, 表明它们具有金属性质. 此外, 自旋向上和自旋向下的能带是不对称的, 表明这两个体系都具有磁性.

#### 3.3.2 磁矩和自旋磁化率

首先探究了不考虑 SOC 时 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 与 Fe<sub>4</sub>N 两种材料的磁矩差异. 表 1 给出了 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的和其他反钙钛矿氮化物的磁矩和自旋极化率. Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的总磁矩为 8.18 $\mu_B$ , 其中 Fe 的磁矩是 2.58 $\mu_B$ , N 和 Pt 的原子磁矩分别是 0.02 $\mu_B$  和 0.42 $\mu_B$ , 说明 N 和 Pt 的原子磁矩在 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的总磁矩中占比较低, Fe 的原子磁矩对 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的总磁矩作主要贡献. 掺杂 Pt 原子之后, Fe<sub>4</sub>N 的磁矩从 9.91 $\mu_B$  减小到 8.18 $\mu_B$ . Pt 原子的磁矩为 0.42 $\mu_B$ , 明显小于 Fe<sub>1</sub> (2.95 $\mu_B$ ) 原子的磁矩. 一般情况下, 磁矩大小

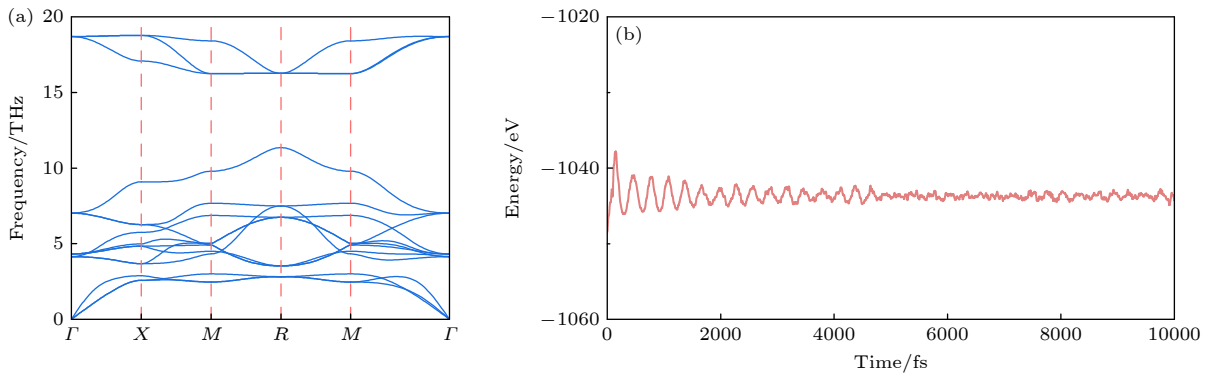


图 3 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的 (a) 声子谱和 (b) 动态模拟过程中总能量随时间的变化

Fig. 3. (a) Phonon spectrum and (b) the variation of total energy with time during the dynamic simulation process of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N.



图 4 (a) 未考虑 SOC 与考虑 SOC 的 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的能带结构对比; 不考虑 SOC 时 (b) Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 和 (c) Fe<sub>4</sub>N 的能带结构

Fig. 4. (a) Comparison of the band structures of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N with and without SOC; the energy band structure of (b) Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N and (c) Fe<sub>4</sub>N without SOC.

表 1 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 与其他反钙钛矿氮化物的磁矩 (单位:  $\mu_B$ ) 和自旋极化率  
Table 1. Magnetic moments (units:  $\mu_B$ ) and spin polarizability of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N and other anti-perovskite nitrides.

参数	Pt <sup>c</sup> Fe <sub>3</sub> N		Fe <sub>4</sub> N		Ga <sup>c</sup> Mn <sub>3</sub> N	Cu <sup>c</sup> Fe <sub>3</sub> N	
	本工作	文献[44]	本工作	文献[22]			
磁矩	N	0.02	—	0.02	-0.04	—	0.05 <sup>[46]</sup>
	Fe <sub>  </sub> /Mn	2.58	2.52	2.31	2.32	2.60 <sup>[45]</sup>	2.54 <sup>[46]</sup>
	Pt/Fe <sub>I</sub> /Ga/Cu	0.42	0.68	2.95	2.96	—	0.03 <sup>[46]</sup>
	Total	8.18	8.26	9.91	9.94	2.89 <sup>[45]</sup>	6.18 <sup>[46]</sup>
自旋极化率/%	-70.4	—	-47.9	—	60.0 <sup>[47]</sup>	36.5 <sup>[12]</sup>	

会随磁性原子与体系中其他原子杂化作用强度的增强而逐渐降低<sup>[48]</sup>. 此外, 与其他反钙钛矿氮化物做对比发现, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的总磁矩还大于 Ga<sup>c</sup>Mn<sub>3</sub>N (2.89 $\mu_B$ ) 和 Cu<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N (6.18 $\mu_B$ ). 这是因为计算得到的 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 为铁磁耦合, 而 Ga<sup>c</sup>Mn<sub>3</sub>N 更倾向于反铁磁耦合导致原子之间磁矩的相互抵消, 且 N 和 Ga 基本不贡献磁矩. 而非金属元素 Cu (0.03 $\mu_B$ ) 的原子磁矩小于 Pt (0.42 $\mu_B$ ) 的原子磁矩从而导致 Cu<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的总磁矩小于 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N. 所以, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 与其他反钙钛矿氮化物相比有更大的磁矩.

为了深入探究 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 大磁矩的起源, 图 5 对 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的总态密度和原子的轨道分态密度展开系统分析. 从图 5(a), (e) 可以看出, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 和 Fe<sub>4</sub>N 的态密度在自旋向上与自旋向下两个通道中表现出明显的不对称性. 在费米能级附近 (-5—5 eV 区间), 态密度呈现显著的自旋分裂, 反映出价带顶与导带底在两种自旋通道中的差异. 进一步从图 5(c), (d), (g), (h) 可知, 费米能级附近的自旋极化态主要来源于过渡金属 Fe 和 Pt 的 d 轨道贡献. 这种自旋不对称性导致未完全填充的 d 轨道产生局域磁矩, 从而使 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 和 Fe<sub>4</sub>N 均表现出一定的磁矩. 从图 5(b), (f) 可见, N 的自旋向上态与自旋向下态分布基本对称, 说明 N 的自旋向上和自旋向下的电子数几乎相等, 因此对 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 总磁矩的贡献较弱. 对于 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 体系, 在 -5—0 eV 能量区间内 Fe<sub>||</sub>-3d 和 Pt-5d 电子轨道发生强烈的杂化, 导致费米能级附近的电子局域性增强, 如图 5(c), (d) 所示. 对于 Fe<sub>4</sub>N 体系, 在 -5—0 eV 能量区间内 Fe<sub>||</sub>-3d 和 Fe<sub>I</sub>-3d 电子轨道发生强烈的杂化, 并对费米能级附近的总态密度有重要贡献, 如图 5(g), (h) 所示. 进一步结合图 5(d) 分析: 在 -10—5 eV 的能量区间内, Pt 的 s 轨道呈现轻微的杂化峰, 该峰与图 5(b), (c) 在同一能量区间的态密度峰形成重叠, 表明 Pt-s 轨道与 N-p 轨道、Fe-d 轨道在该

能量范围内存在轨道重叠, 进而说明 N, Fe 与 Pt 原子间发生弱杂化作用. 综合上述态密度特征可知, Pt 对 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 总磁矩的贡献较小.

Bader 电荷分析进一步阐明了 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的磁矩来源. 从表 2 可以看到, Pt 原子磁矩小的原因是得到了 0.88 个电子, 使得 Pt 原子内部配对电子数增多, 导致原子磁矩减小. Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 中的 Fe<sub>||</sub> 原子磁矩 (2.58 $\mu_B$ ) 要比 Fe<sub>4</sub>N (2.31 $\mu_B$ ) 的大, 这是由于 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 中 Fe<sub>||</sub> 原子失去的电子数 (0.75 $e$ /Fe) 比 Fe<sub>4</sub>N (0.38 $e$ /Fe) 的多. 对于 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 和 Fe<sub>4</sub>N 这两个体系来说, N 原子分别得到 1.38 $e$  和 1.33 $e$ . 对于 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 体系, Fe<sub>||</sub> 原子失去的电子转移到了 N 原子和 Pt 原子中, 而对于 Fe<sub>4</sub>N 体系, Fe<sub>||</sub> 和 Fe<sub>I</sub> 原子失去的电子都转移到了 N 原子中. 这一电荷转移规律可通过图 6 的差分电荷密度图得到直观印证. 从图 6(a), (b) 可以看到, 对于 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 和 Fe<sub>4</sub>N 这两个体系来说, Fe<sub>||</sub> 原子周围呈现明显的电荷耗尽特征, 而 N 原子区域表现为显著的电荷积累, 表明 Fe<sub>||</sub> 失去的电子主要向 N 原子发生转移.

表 2 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 和 Fe<sub>4</sub>N 的电荷转移情况 (电荷转移单位为  $e$ /atom), 正值表示得到电子, 负值表示失去电子  
Table 2. Charge transfer characteristics of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N and Fe<sub>4</sub>N (unit of charge transfer is  $e$ /atom), positive values indicate electron gain, while negative values indicate electron loss.

	N	Fe <sub>  </sub>	Pt/Fe <sub>I</sub>
Pt <sup>c</sup> Fe <sub>3</sub> N	1.38	-0.75	0.88
Fe <sub>4</sub> N	1.33	-0.38	-0.18

在考虑 SOC 的作用下, 通过第一性原理计算了 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 体系中原子的自旋磁矩和轨道磁矩, 并绘制了在 z 轴方向的自旋极化投影态密度以及原子分波投影态密度, 如表 3 和图 7 所示. 从表 3 可以看到, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 体系中 Pt 原子的自旋磁矩和轨道

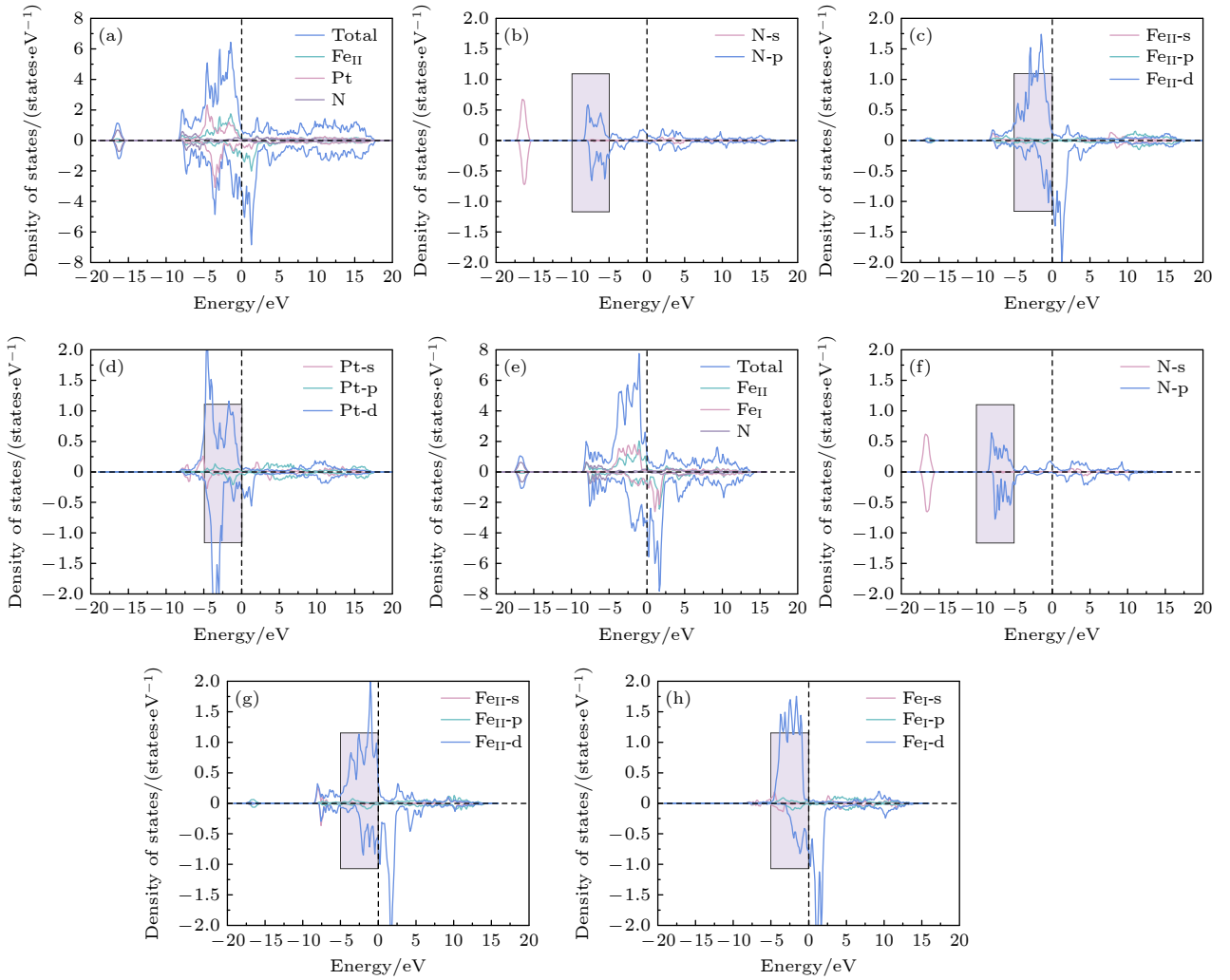


图 5 (a)  $\text{Pt}^*\text{Fe}_3\text{N}$  和 (e)  $\text{Fe}_4\text{N}$  的总态密度;  $\text{Pt}^*\text{Fe}_3\text{N}$  中 (b) N, (c)  $\text{Fe}_{\text{II}}$  和 (f) Pt 原子的分波态密度;  $\text{Fe}_4\text{N}$  中 (f) N, (g)  $\text{Fe}_{\text{II}}$  和 (h)  $\text{Fe}_{\text{I}}$  原子的分波态密度

Fig. 5. The total DOS of (a)  $\text{Pt}^*\text{Fe}_3\text{N}$  and (e)  $\text{Fe}_4\text{N}$ ; the projected DOS of (b) N, (c)  $\text{Fe}_{\text{II}}$  and (d) Pt atoms in  $\text{Pt}^*\text{Fe}_3\text{N}$ ; the projected DOS of (f) N, (g)  $\text{Fe}_{\text{II}}$  and (h)  $\text{Fe}_{\text{I}}$  atoms in  $\text{Fe}_4\text{N}$ .

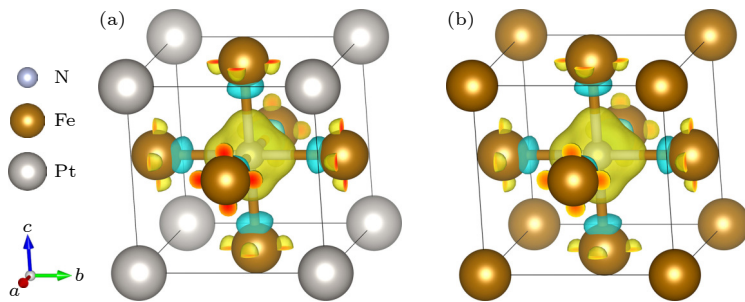


图 6 (a)  $\text{Pt}^*\text{Fe}_3\text{N}$  和 (b)  $\text{Fe}_4\text{N}$  的差分电荷密度图. 青色区域代表电荷耗尽, 黄色区域代表电荷积累

Fig. 6. Charge density difference plots of (a)  $\text{Pt}^*\text{Fe}_3\text{N}$  and (b)  $\text{Fe}_4\text{N}$ . Cyan region represents the charge depletion, and yellow region represents the charge accumulation.

磁矩分别为  $0.42\mu_{\text{B}}$  和  $0.14\mu_{\text{B}}$ ,  $\text{Fe}_{\text{II}}$  原子的自旋磁矩和轨道磁矩分别为  $2.57\mu_{\text{B}}$  和  $0.06\mu_{\text{B}}$ . 将自旋磁矩和轨道磁矩相加后得到  $\text{Pt}^*\text{Fe}_3\text{N}$  的总磁矩为  $8.47\mu_{\text{B}}$ , 大于未考虑 SOC 时的总磁矩 ( $8.18\mu_{\text{B}}$ ). 在

图 7(a) 可以看到, 费米能级附近的电子态主要由 Fe 原子的 3d 态和 Pt 原子的 5d 态组成. 在  $-2.5\text{--}0\text{ eV}$  能量范围内, Fe 原子和 Pt 发生强烈杂化, 对体系的总磁矩做出贡献. 而体系中 N 原子对体系

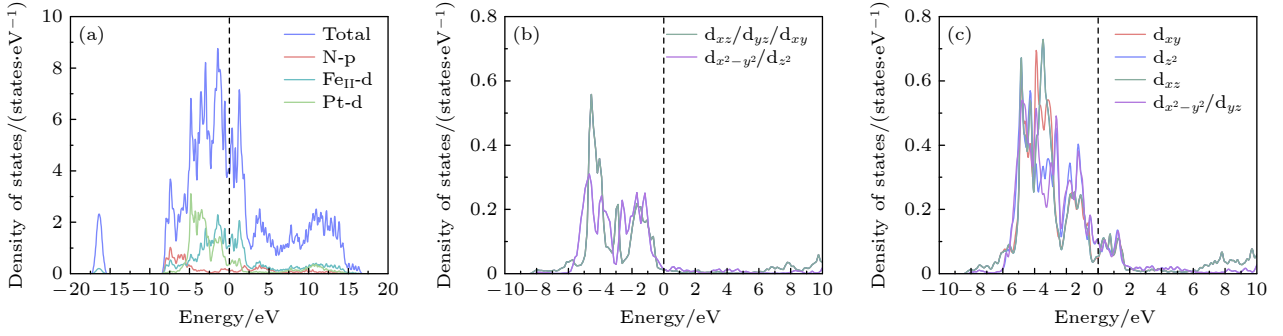


图 7 (a) 考虑 SOC 的 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的在 z 轴方向的自旋极化投影态密度图; (b) 不考虑 SOC 的 Pt 原子 d 轨道分波态密度; (c) 考虑 SOC 的 Pt 原子 d 轨道在 z 轴方向的自旋极化投影态密度图

Fig. 7. (a) Spin-polarized projected DOS of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N along the z-axis with SOC; the projected density of states of d-orbit (b) Pt, (c) spin-polarized projected DOS of Pt d-orbitals along the z-axis with SOC.

的态密度贡献较小, 可以忽略不计. 加入 SOC 之后, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 体系中的 Pt 原子的轨道磁矩对体系中的总磁矩的修正做主要贡献. 由于 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 是反钙钛矿结构, 所以 Pt 原子处在八面体晶体场空位. 由于能级简并, 未考虑 SOC 时 Pt 原子的 d 轨道被分为低能级 t<sub>2g</sub> (d<sub>xz</sub>, d<sub>yz</sub> 和 d<sub>xy</sub>) 和高能级 e<sub>g</sub> (d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub> 和 d<sub>z<sup>2</sup></sub>), 如图 7(b) 所示. 考虑 SOC 之后, Pt 原子 d 轨道的 t<sub>2g</sub> 和 e<sub>g</sub> 能级发生了分裂, 其中 d<sub>xz</sub>, d<sub>z<sup>2</sup></sub> 和 d<sub>xy</sub> 被分裂成的单重能级, 而 d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub> 和 d<sub>yz</sub> 发生了能级简并, 如图 7(c) 所示. 因此, 体系中 Pt 原子较强的 SOC 效应能有效地解除轨道简并, 并诱发轨道磁矩的产生, 从而对体系的总磁矩进行了修正. 这证明 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 体系中的 SOC 作用对电子结构和磁性有一定影响.

表 3 考虑 SOC 后 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的自旋磁矩和轨道磁矩  
Table 3. Spin and orbital magnetic moments of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N with SOC.

参数	N	Fe <sub>II</sub>	Pt	
自旋磁矩/ $\mu_B$	0.02	2.57	0.42	本工作
	—	2.47	0.54	文献[22]
轨道磁矩/ $\mu_B$	0.00	0.06	0.14	本工作
	—	0.053	0.14	文献[22]

此外, 为研究元素取代对自旋极化率的影响和依赖关系, 自旋极化率可表示为 [22]

$$P = \frac{N_{s-u} - N_{s-d}}{N_{s-u} + N_{s-d}}. \quad (2)$$

其中,  $N_{s-u}$  和  $N_{s-d}$  分别是在费米能级上自旋向上和自旋向下的电子数. 通过 (2) 式计算得到 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的自旋极化率为 -70.4%, 且其自旋极化率主要由自旋向下的电子占主导. 该值的绝对值是 Fe<sub>4</sub>N 自旋极化率 (-47.9%<sup>[12]</sup>) 的 1.47 倍. 此外, 从表 1 可知,

计算得到的 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的自旋极化率大于 Ga<sup>c</sup>Mn<sub>3</sub>N (60.0%) 和 Cu<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N (36.5%), 表明 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 相比于其他反钙钛矿氮化物具有更强的自旋极化特性. 这一结果说明, 通过元素取代可实现对材料自旋极化率的有效调控.

### 3.3.3 磁晶各向异性

当磁矩从易轴切换到难轴时, 需要克服能量 [49], 这个能量被称为 MAE. MAE 又分为磁晶各向异性 (MCA)、形状磁各向异性、表面磁各向异性等. 由于计算的 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的 MAE 较小, 仅为 meV 级别, 所以 MAE 由二阶微扰理论计算得出 [50]. 根据自旋方向的不同, MAE 的表达形式不同, 自旋同向的电子可以由 (3) 式计算得出:

$$\begin{aligned} \text{MAE} &= E^{--}(x) - E^{--}(z) \\ &= \xi^2 \sum_{o^-, u^-} \frac{|\langle o^- | L_z | u^- \rangle|^2 - |\langle o^- | L_x | u^- \rangle|^2}{E_u^- - E_o^-}. \end{aligned} \quad (3)$$

自旋反向的电子可以由 (4) 式计算得出:

$$\begin{aligned} \text{MAE} &= E^{+-}(x) - E^{+-}(z) \\ &= -\xi^2 \sum_{o^+, u^-} \frac{|\langle o^+ | L_z | u^- \rangle|^2 - |\langle o^+ | L_x | u^- \rangle|^2}{E_u^- - E_o^+}, \end{aligned} \quad (4)$$

其中, + 和 - 分别代表自旋向上和自旋向下的电子态,  $\xi$  为自旋-轨道耦合 (SOC) 常数,  $o$  代表占据态,  $u$  代表未占据态; 占据态和未占据态的能级分别用  $E_o$  和  $E_u$  表示;  $\hat{L}_x$  和  $\hat{L}_z$  分别为沿  $x$  轴与  $z$  轴的轨道角动量算符. 由于 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 是块体材料, 所以具体研究的是 MAE 中的 MCA. MCA 可通过 (5) 式进行计算 [51]:

$$\text{MCA} = \frac{\text{MAE}}{V}, \quad (5)$$

其中,  $V$  为晶胞体积. 当 MCA 为正值时, 表明其为 IMA; 当 MCA 为负值时, 则表明其为 PMA. 从由 (3) 式和 (4) 式可以得知, MAE 与轨道之间的耦合作用有关, 图 8 所示为原子轨道分辨 MCA 进一步解释总 MCA 的成因.

图 8 给出了  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  和  $\text{Fe}_4\text{N}$  的总 MCA 和原子分辨 MCA, 及  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  和  $\text{Fe}_{\text{IIB}}$  的轨道分辨 MCA. 由图 8(a), (d) 可得,  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  和  $\text{Fe}_4\text{N}$  分别表现出弱 PMA 和弱 IMA, 且  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  和  $\text{Fe}_{\text{IIB}}$  原子对 MCA 有显著贡献.  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  原子对  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的 MCA 贡献 IMA, 而对  $\text{Fe}_4\text{N}$  的 MCA 贡献 PMA.  $\text{Fe}_{\text{IIB}}$  原子对  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的 MCA 贡献 PMA, 而对  $\text{Fe}_4\text{N}$  的 MCA 贡献 IMA. 从图 8(b) 可以看到,  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  的非零耦合矩阵元  $\langle z^2|\hat{L}_z|yz\rangle$  贡献了  $16.645 \text{ J/cm}^3$  的 IMA, 非零耦合矩阵元  $\langle x^2-y^2|\hat{L}_x|xy\rangle$ ,  $\langle xz|\hat{L}_x|xy\rangle$  和  $\langle xz|\hat{L}_x|yz\rangle$  分别贡献了  $-5.453 \text{ J/cm}^3$ ,  $-5.132 \text{ J/cm}^3$  和  $-6.230 \text{ J/cm}^3$  的 PMA.  $\langle z^2|\hat{L}_z|yz\rangle$  对应的 MCA 数值显著高于其他矩阵元, 且该矩阵元与 IMA 相关; 而  $\langle x^2-y^2|\hat{L}_x|xy\rangle$  等矩阵元虽与 PMA 相关, 但其对应的 MCA 数值绝对值幅度均远小于  $\langle z^2|\hat{L}_z|yz\rangle$  的贡献. 因此,  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  的磁各向异性行为主要由 IMA 主导. 同理, 在图 8(c) 中,  $\text{Fe}_{\text{IIB}}$  的非零耦合

矩阵元  $\langle x^2-y^2|\hat{L}_x|xy\rangle$  贡献了  $-21.959 \text{ J/cm}^3$  的 PMA; 非零耦合矩阵元  $\langle xz|\hat{L}_z|xy\rangle$ ,  $\langle xz|\hat{L}_z|yz\rangle$  和  $\langle z^2|\hat{L}_z|yz\rangle$  分别贡献了  $6.230$ ,  $5.135$  和  $4.352 \text{ J/cm}^3$  的 IMA. 由于  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  和  $\text{Fe}_{\text{IIB}}$  原子对 MCA 的贡献相互抵消, 从而导致  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  呈现弱的 PMA.  $\text{Fe}_4\text{N}$  的  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  的非零耦合矩阵元  $\langle z^2|\hat{L}_z|yz\rangle$  贡献了  $4.479 \text{ J/cm}^3$  的 IMA, 非零耦合矩阵元  $\langle x^2-y^2|\hat{L}_x|xy\rangle$  贡献了  $-6.142 \text{ J/cm}^3$  的 PMA, 如图 8(e) 所示.  $\text{Fe}_4\text{N}$  的  $\text{Fe}_{\text{IIB}}$  的非零耦合矩阵元  $\langle x^2-y^2|\hat{L}_x|xy\rangle$  贡献了  $-6.066 \text{ J/cm}^3$  的 PMA, 非零耦合矩阵元  $\langle x^2-y^2|\hat{L}_z|yz\rangle$  和  $\langle z^2|\hat{L}_z|yz\rangle$  分别贡献了  $2.341$  和  $3.811 \text{ J/cm}^3$  的 IMA, 如图 8(f) 所示. 由于  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  和  $\text{Fe}_{\text{IIB}}$  原子对的 MCA 的贡献相互抵消, 从而导致  $\text{Fe}_4\text{N}$  呈现弱的 IMA.

表 4 列出了  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  与其他反钙钛矿氮化物的 MCA, 其中正值表示 IMA, 负值表示 PMA. 可以看到掺杂 Pt 原子后  $\text{Fe}_4\text{N}$  的易磁化轴从面内翻转为面外, 且  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  ( $-0.003 \text{ J/cm}^3$ ) 的 MCA 比  $\text{Ga}^c\text{Mn}_3\text{N}$  ( $-0.022 \text{ J/cm}^3$ ) 和  $\text{Fe}^c\text{Mn}_3\text{N}$  ( $-0.1 \text{ J/cm}^3$ ) 都小. 这说明计算得到的  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  表现出弱 PMA, 也为自旋电子器件的材料提供了更多的选择. 弱 PMA 的特点在于磁矩翻转阈值较低, 仅需很小的

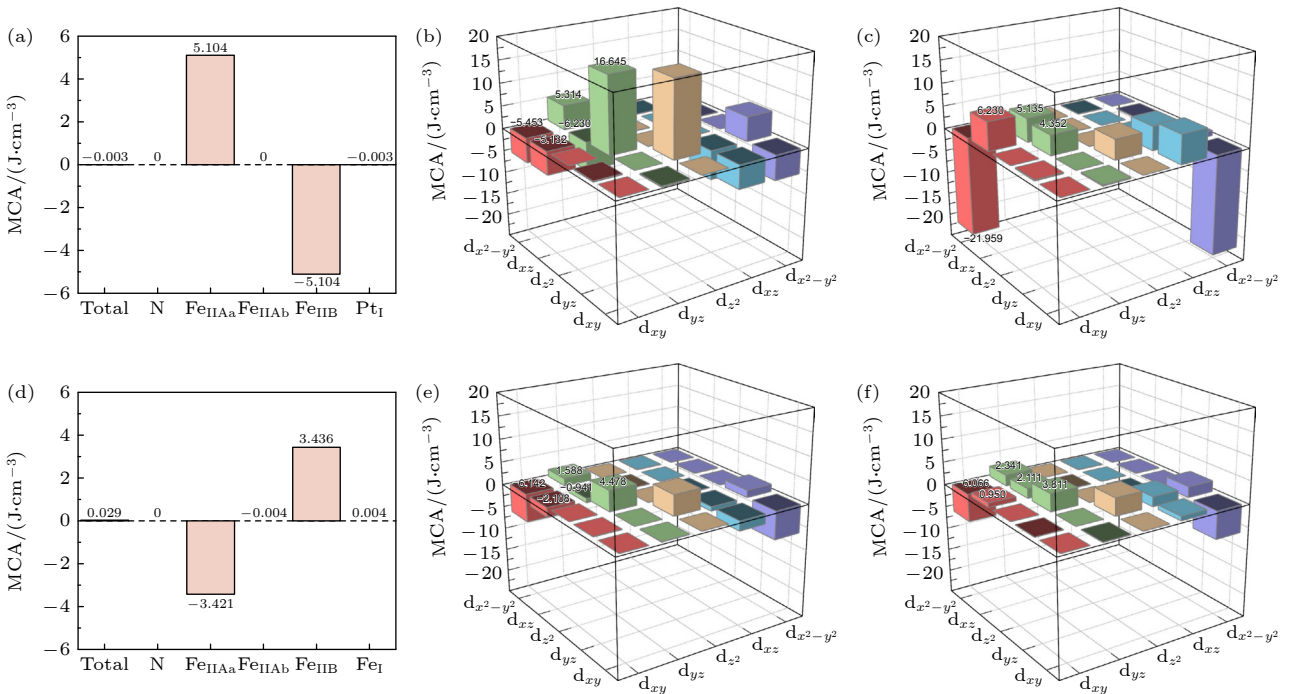


图 8  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$  的 (a) 总 MCA 和原子分辨 MCA, (b)  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  和 (c)  $\text{Fe}_{\text{IIB}}$  的轨道分辨 MCA;  $\text{Fe}_4\text{N}$  的 (d) 总 MCA 和原子分辨 MCA, (e)  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  和 (f)  $\text{Fe}_{\text{IIB}}$  的轨道分辨 MCA

Fig. 8. (a) The total and atom-resolved MCA of  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$ , (b) the orbital-resolved MCA of  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  and (c)  $\text{Fe}_{\text{IIB}}$  of  $\text{Pt}^c\text{Fe}_3\text{N}$ ; (d) the total MCA and atom-resolved MCA of  $\text{Fe}_4\text{N}$ , (e) the orbital-resolved MCA of  $\text{Fe}_{\text{IIAa}}$  and (f)  $\text{Fe}_{\text{IIB}}$  of  $\text{Fe}_4\text{N}$ .

外加电流或电场即可驱动磁矩完成翻转,这不仅能大幅降低器件磁矩翻转过程中的能量损耗,符合低功耗自旋电子器件的发展需求,更能为器件的多场调控提供良好的适配性,拓宽了自旋电子器件的应用范围.所以,这种弱 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的 PMA 特性,为对低功耗、可控性需求的自旋电子器件的材料提供了更多元的选择.

表 4 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 与其他反钙钛矿氮化物的 MCA (单位为 J/cm<sup>3</sup>)

Table 4. The MCA of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N and other anti-perovskite nitrides (units of MCA is J/cm<sup>3</sup>).

	Pt <sup>c</sup> Fe <sub>3</sub> N	Fe <sub>4</sub> N	Ga <sup>c</sup> Mn <sub>3</sub> N <sup>[52]</sup>	Fe <sup>c</sup> Mn <sub>3</sub> N <sup>[53]</sup>
MCA	-0.003	0.029	-0.022	-0.100

## 4 结 论

本文采用第一性原理计算,系统探究了 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的电子结构与磁学特性. Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 呈现立方反钙钛矿型结构,晶格常数为 3.856 Å. 声子谱和分子动力学模拟结果表明, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 在动力学与热力学层面均具备良好稳定性. 能带结果表明, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 具备金属特性和磁性. 尽管重金属 Pt 原子具有较大的 SOC 作用,但对 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的能带结构并未造成明显影响. 在未考虑 SOC 时, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 体系总磁矩为 8.18μ<sub>B</sub>,其中 Fe<sub>||</sub> 和 Pt 的原子磁矩分别为 2.58μ<sub>B</sub> 和 0.42μ<sub>B</sub>, Fe 为主要磁矩来源;考虑 SOC 后,体系总磁矩增至 8.47μ<sub>B</sub>,这源于 Fe<sub>||</sub> 与 Pt 分别产生 0.06μ<sub>B</sub> 和 0.14μ<sub>B</sub> 的轨道磁矩. Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 体系中强的 SOC 使得 Pt 原子的 d 轨道能级发生了自旋劈裂,从而使 Pt 原子产生了轨道磁矩,这表明体系中的 SOC 对磁性具有不可忽视的影响. 此外, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的自旋极化率为 -70.4%,以自旋向下电子为主,绝对值是母体 Fe<sub>4</sub>N(-47.9%) 的 1.47 倍. 从 MCA 中可以看到, Pt 原子的掺杂已使 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 体系从 Fe<sub>4</sub>N 的 IMA(0.029 J/cm<sup>3</sup>) 反转为易轴垂直于膜面的 PMA(-0.003 J/cm<sup>3</sup>). 尽管当前 Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 的 MCA 值相对较小,但通过应变与界面工程,进一步优化和增强 PMA 是具有可行性的后续研究方向. 综上, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N 具备高自旋极化率、大磁矩和弱 PMA 等特点,在新一代多场调控的自旋电子器件领域展现出重要应用潜力,可为该领域发展提供新的材料选择与理论支撑.

## 数据可用性说明

本篇论文的关联数据可在科学数据银行 <https://doi.org/10.57760/sciencedb.j00213.00188> 中访问获取.

## 参考文献

- [1] Baibich M N, Broto J M, Fert A, Nguyen Van Dau F, Petroff F, Etienne P, Creuzet G, Friederich A, Chazelas J 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2472
- [2] Miyazaki T, Tezuka N 1995 *J. Magn. Magn. Mater.* **139** L231
- [3] Moodera J S, Kinder L R, Wong T M, Meservey R 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 3273
- [4] Mostufa S, Liang S, Chugh V K, Wang J P, Wu K 2024 *npj Spintronics* **2** 26
- [5] Makushko P, Ge J, Cañón Bermúdez G S, Volkov O, Zabala Y, Avdoshenko S, Illing R, Ionov L, Kaltenbrunner M, Fassbender J, Xu R, Makarov D 2025 *Nat. Commun.* **16** 1647
- [6] Yuan Y H, Jiang Y F 2024 *Semicond. Sci. Technol.* **39** 033001
- [7] Zou J, Wang L F, He J, Wu B, Xie Q 2022 *Nanomaterials* **12** 293
- [8] Wang Y G, Zhang H, Zhu J L, Lü X J, Li S, Zou R Q, Zhao Y S 2020 *Adv. Mater.* **32** 1905007
- [9] Liang Q Q, Hu D Y, Tang T Y, Gao H X, Wu S Q, Li L, Dai Q, Tang Y L 2023 *J. Mater. Res. Technol.* **26** 1798
- [10] Elseman A M, Ali F A, Ewais E, Ibrahim I, Rashad M M 2025 *Crit. Rev. Solid State Mater. Sci.* **50** 539
- [11] Liu Y X, Yang Z L, Yang H 2023 *J. Phys. Chem. C* **127** 728
- [12] Xiao K, Shi X H, Zhang X Y, Ping Q M, Du L L 2025 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **27** 6677
- [13] Costa-Krämer J L, Borsa D M, García-Martín J M, Martín-González M S, Boerma D O, Briones F 2004 *Phys. Rev. B* **69** 144402
- [14] Marciniak W, Werwiński M 2023 *Phys. Rev. B* **108** 214433
- [15] Lin C C, Liu T R, Lin S R, Boopathi K M, Chiang C H, Tzeng W Y, Chien W H C, Hsu H S, Luo C W, Tsai H Y, Chen H A, Kuo P C, Shiue J, Chiou J W, Pong W F, Chen C C, Chen C W 2022 *J. Am. Chem. Soc.* **144** 15718
- [16] Gil Rebaza A V, Desimoni J, Peltzer y Blancá E L 2012 *Phys. B Condens. Matter* **407** 3240
- [17] Monachesi P, Björkman T, Gasche T, Eriksson O 2013 *Phys. Rev. B* **88** 054420
- [18] Von Appen J, Dronskowski R 2005 *Angew. Chem. Int. Ed.* **44** 1205
- [19] Lee J S, Krockenberger Y, Takahashi K S, Kawasaki M, Tokura Y 2012 *Phys. Rev. B* **85** 035101
- [20] Misemer D K 1988 *J. Magn. Mater.* **72** 267
- [21] Music D, Schneider J M 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 031914
- [22] Matar S, Mohn P, Kübler J 1992 *J. Magn. Magn. Mater.* **104** 1927
- [23] Wiener G W, Berger J A 1955 *JOM* **7** 360
- [24] Chung D Y, Jun S W, Yoon G, Kwon S G, Shin D Y, Seo P, Yoo J M, Shin H, Chung Y H, Kim H, Mun B S, Lee K S, Lee N S, Yoo S J, Lim D H, Kang K, Sung Y E, Hyeon T 2015 *J. Am. Chem. Soc.* **137** 15478
- [25] Han Y H, Xiong Y, Liu C W, Zhang H W, Zhao M Q, Chen W, Chen W X, Huang W 2021 *J. Catal.* **396** 351
- [26] Ding X, Yin S B, An K, Luo L, Shi N, Qiang Y H, Pasupathi S, Pollet B G, Shen P K 2015 *J. Mater. Chem. A* **3** 4462

- [27] Kresse G, Joubert D 1999 *Phys. Rev. B* **59** 1758
- [28] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [29] Rkhis M, Laasri S, Touhtouh S, Hlil E K, Bououdina M, Aluja R, Zaidat K, Obbade S, Hajjaji A 2022 *Int. J. Hydrogen Energy* **47** 3022
- [30] Duan P R, Ping Q M, Sun D Q, Luo Q H, Li H J, Xu H Y, Liu X, Shi X H, Du L L 2025 *J. Mater. Chem. C* **13** 6728
- [31] Kohn W, Sham L J 1965 *Phys. Rev.* **140** A1133
- [32] Monkhorst H J, Pack J D 1976 *Phys. Rev. B* **13** 5188
- [33] Togo A, Tanaka I 2015 *Scr. Mater.* **108** 1
- [34] Al-Hazmi G H, Amina, Almahri A, Quraisi A M, Norberdiyeva M, Tirth V, Algahtani A, Al-Humaidi J Y, Alsuhaibani A M, Mohammed R M, Hadia N M A, Zaman A 2025 *J. Inorg. Organomet. Polym. Mater.* **35** 863
- [35] Nosé S 1984 *J. Chem. Phys.* **81** 511
- [36] Singh N, Saini S M, Nautiyal T, Auluck S 2007 *J. Phys. : Condens. Matter* **19** 346226
- [37] Hu W Y, Qian M C, Zheng Q Q 1997 *Physica. C. Supercond.* **282** 1625
- [38] Cococcioni M, Gironcoli S D 2005 *Phys. Rev. B* **71** 035105
- [39] Sifkovits M, Smolinski H, Hellwig S, Weber W 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **204** 191
- [40] Li Z R, Mi W B, Bai H L 2018 *Comput. Mater. Sci.* **142** 145
- [41] Stadelmaier H H, Fraker A C 1961 *Transactions of the Metallurgical Society of ALME* **218** 571
- [42] Gherriche A, Bouhemadou A, Al-Douri Y, Bin-Omran S, Khenata R, Hadi M A 2021 *Mater. Sci. Semicond. Process.* **131** 105890
- [43] Suetin D V, Shein I R 2018 *Phys. Solid State* **60** 213
- [44] Nakagawa T, Takagi Y, Matsumoto Y, Yokoyama T 2008 *Jpn. J. Appl. Phys.* **47** 2132
- [45] Azouaoui A, Benzakour N, Hourmatallah A, Bouslykhane K 2021 *Philos. Mag.* **101** 1587
- [46] Sofi M Y, Ramzan A, Khan M S, Kumar A, Rather M R, Sofi S A, Khandy S A, Khan M A 2025 *Mater. Sci. Semicond. Process* **185** 108925
- [47] Miao M S, Herwadkar A, Lambrecht W R L 2005 *Phys. Rev. B* **72** 033204
- [48] Li D, Roh J W, Jeon K J, Gu Y S, Lee W 2008 *Phys. Status Solidi B* **245** 2581
- [49] Guan Z Y, Ni S 2020 *Nanoscale* **12** 22735
- [50] Wang D S, Wu R Q, Freeman A J 1993 *Phys. Rev. B.* **47** 14932
- [51] Kadim G, Masrouf R 2025 *Ceram. Int.* **51** 147
- [52] Lee H, Sukegawa H, Liu J, Ohkubo T, Kasai S, Mitani S, Hono K 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 032403
- [53] Anzai A, Takata F, Gushi T, Toko K, Suemasu T 2018 *J. Cryst. Growth* **489** 20

## High spin polarization rate and weak perpendicular magnetic anisotropy in antiperovskite Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N\*

ZHANG Xingyuan<sup>#</sup> CHEN Zhe<sup>#</sup> SHI Xiaohui<sup>†</sup> XU Linzhe  
ZHANG Shenghao CHEN Jianhua HUAN Chengzhi XIE Yuxin

(School of Physics and Electronic Engineering, Linyi University, Linyi 276000, China)

(Received 18 December 2025; revised manuscript received 24 January 2026)

### Abstract

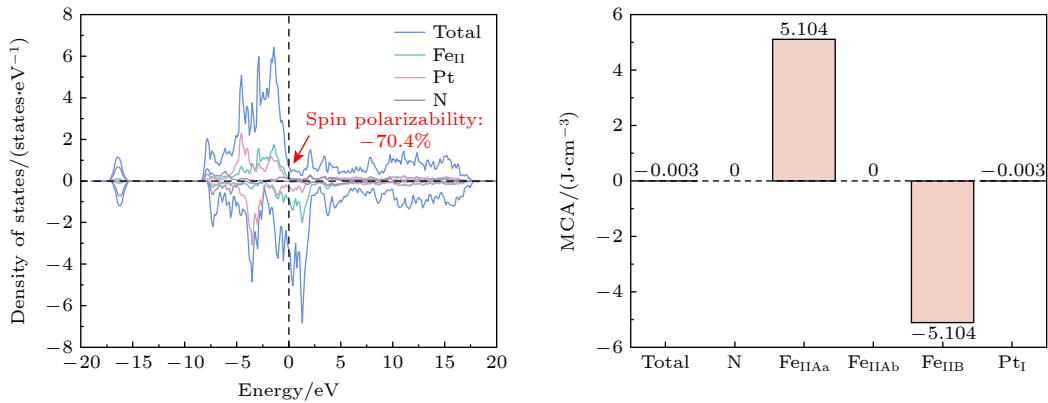
Magnetic anisotropy and spin polarizability are recognized as the critical parameters influencing the performance of ferromagnetic electrodes in spintronic devices. Fe<sub>4</sub>N exhibits a high Curie temperature, high saturation magnetization, and good stability; however, its application in spintronic devices is limited by the low spin polarizability and in-plane magnetic anisotropy (IMA). Atomic doping is an effective method to modulate the magnetic properties of Fe<sub>4</sub>N. As a heavy metal element, Pt exhibits a strong spin-orbit coupling (SOC) effect. Doping Pt into Fe<sub>4</sub>N effectively enhances the overall SOC strength of the system, thereby realizing the regulation of the electronic structure and magnetic properties of the material. In this work, the electronic structure and magnetic properties of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N were investigated based on first-principles calculations. The calculated results show that Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N maintains a cubic anti-perovskite structure with a lattice constant of 3.856 Å. Phonon spectrum and ab initio molecular dynamics simulations confirm that Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N possesses

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 52201220), the Natural Science Foundation of Shandong Province, China (Grant No. ZR2022QA052), and the College Students' Innovation and Entrepreneurship Training Program of Linyi University, China (Grant No. X2025104520503).

<sup>#</sup> These authors contributed equally.

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: shixiaohui@lyu.edu.cn

excellent dynamic and thermodynamic stability. The band structure calculations reveal that Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N exhibits metallic properties. The band structure of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N shows no significant change upon the inclusion of SOC. The band distribution trends along all high-symmetry paths in the Brillouin zone are nearly identical whether SOC is considered or not. The total magnetic moment of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N is 8.18μ<sub>B</sub> without considering SOC. The atomic magnetic moments of Fe<sub>II</sub> and Pt are 2.58μ<sub>B</sub> and 0.42μ<sub>B</sub>, respectively. The total magnetic moment of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N increases from 8.18 to 8.47μ<sub>B</sub> when SOC is considered, which is primarily due to the SOC-induced orbital contributions of 0.06μ<sub>B</sub> and 0.14μ<sub>B</sub> from the Fe<sub>II</sub> and Pt atoms, respectively. The strong SOC associated with Pt atoms effectively lifts the *d*-orbital degeneracy and induces an orbital magnetic moment, which in turn enhances the total magnetic moment of the system. The spin polarizability of Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N is -70.4%, which is 1.47 times larger than that of Fe<sub>4</sub>N (-47.9%). In addition, the incorporation of Pt atoms induces the transformation of Fe<sub>4</sub>N from a weak IMA of 0.029 J/cm<sup>3</sup> to a weak perpendicular magnetic anisotropy (PMA) of -0.003 J/cm<sup>3</sup>. The contributions of Fe<sub>IIAa</sub> (5.104 J/cm<sup>3</sup>) and Fe<sub>IIB</sub> (-5.104 J/cm<sup>3</sup>) atoms to the MCA cancel each other in the system, and the Pt atom contributes an MCA of -0.003 J/cm<sup>3</sup>, leading to a weak PMA in Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N. In summary, Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N exhibits a large magnetic moment, high spin polarizability, and weak PMA, demonstrating significant application potential in the field of next-generation spintronic devices.



**Keywords:** Pt<sup>c</sup>Fe<sub>3</sub>N, high spin polarizability, magnetic moment, weak perpendicular magnetic anisotropy, spin-orbit coupling

**DOI:** [10.7498/aps.75.20251733](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251733)

**CSTR:** [32037.14.aps.75.20251733](https://cstr.net.cn/32037.14.aps.75.20251733)

## 反钙钛矿型 $\text{Pt}^{\text{c}}\text{Fe}_3\text{N}$ 的高自旋极化率和弱垂直磁各向异性

张兴媛 陈喆 史晓慧 许林哲 张升昊 陈建华 郇成志 谢雨欣

### High spin polarization rate and weak perpendicular magnetic anisotropy in antiperovskite $\text{Pt}^{\text{c}}\text{Fe}_3\text{N}$

ZHANG Xingyuan CHEN Zhe SHI Xiaohui XU Linzhe ZHANG Shenghao CHEN Jianhua HUAN Chengzhi XIE Yuxin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 100702 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20251733

CSTR: 32037.14.aps.75.20251733

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251733>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

#### 您可能感兴趣的其他文章

##### Articles you may be interested in

电子在自旋-轨道耦合调制下磁受限半导体纳米结构中的传输时间及其自旋极化

Transmission time and spin polarization for electron in magnetically confined semiconductor nanostructure modulated by spin-orbit coupling

物理学报. 2024, 73(11): 118504 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240285>

Rashba自旋-轨道耦合调制的单层半导体纳米结构中电子的自旋极化效应

Electron-spin polarization effect in Rashba spin-orbit coupling modulated single-layered semiconductor nanostructure

物理学报. 2023, 72(2): 028503 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221381>

基于自旋-轨道力矩效应的电流驱动垂直磁矩无场翻转研究

Field-free switching of perpendicular magnetization driven by spin-orbit torque

物理学报. 2026, 75(6): 028503 <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251630>

强相互作用自旋-轨道耦合与夸克-胶子等离子体整体极化

Spin-orbital coupling in strong interaction and global spin polarization

物理学报. 2023, 72(7): 072501 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230102>

自旋-轨道耦合系统的电子涡旋

Electron vortices in spin-orbit coupling system

物理学报. 2022, 71(21): 210301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220751>

自旋-轨道耦合二分量玻色-爱因斯坦凝聚系统的孤子解

Soliton solutions of the spin-orbit coupled binary Bose-Einstein condensate system

物理学报. 2023, 72(10): 106701 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222319>