

12,18

Особенности косвенного взаимодействия в примесном бислое графена в рамках $s-d$ -модели

© М.Б. Белоненко¹, Н.Г. Лебедев², А.В. Пак²¹Волгоградский институт бизнеса,
Волгоград, Россия²Волгоградский государственный университет,
Волгоград, Россия

E-mail: pak.anastasia@gmail.com

(Поступила в Редакцию 29 ноября 2010 г.
В окончательной редакции 27 декабря 2010 г.)

В рамках $s-d$ -модели рассчитаны особенности РККИ-взаимодействия в примесном бислое графена. В качестве примесей рассматривались атомы водорода. Расчеты показали, что на малых расстояниях предпочтительным является антиферромагнитное упорядочение спинов примесей, а с увеличением расстояния упорядочение становится ферромагнитным. Показаны зависимости константы обменного взаимодействия от параметров задачи.

Работа поддержана ФЦП „Научные и научно-педагогические кадры инновационной России“ на 2009–2013 гг. (проект № НК-16(3)) и (проект № П-1145).

1. Введение

Вторую половину XX века без преувеличения можно назвать эрой микроэлектроники. В течение этих 50 лет мир был свидетелем технологической революции, ставшей возможной благодаря цифровой логике и базирующимся на ней информационным технологиям. Однако в любых устройствах, от первого транзистора до современных поражающих своими вычислительными возможностями микропроцессоров, микроэлектроника в основном использует только одно свойство электрона — его заряд. В то же время электрон имеет еще одну, сугубо квантово-механическую характеристику — собственный угловой момент, или спин (и связанный с ним магнитный момент), которая вплоть до недавнего времени не пользовалась особым вниманием разработчиков и исследователей. Сегодня ситуация меняется, и на авансцену выходит новая технология, получившая название „спинтроники“ (spintronics — от spin transport electronics или spin-based electronics) [1–3]. Напомним, что во внешнем магнитном поле собственный магнитный момент электрона, обусловленный спином, ориентируется либо параллельно вектору магнитной индукции (вверх), либо антипараллельно (вниз). В устройствах, построенных на спиновом эффекте, используются, в частности, ферромагнетики.

В последнее время было проведено множество работ, посвященных исследованию перспективного материала графена [4,5], особенно представляющего интерес примесного графена [6–9]. В частности, в работах [10–13] было изучено РККИ (Рудерман–Киттель–Касуя–Иосида)-взаимодействие в длинноволновом приближении для закона дисперсии. Результаты этих работ показывают, что косвенное обменное взаимодействие спадает до нуля с увеличением расстояния между при-

месными атомами, что согласуется с общими представлениями о характере обменных взаимодействий.

Большие изменения электронных и магнитных свойств ожидаются при допировании или адсорбции на поверхности графена различных атомов (щелочных, щелочно-земельных и переходных металлов) [14]. В последнее время большое внимание исследователей сосредоточено на расчетах изменений электронных, магнитных, проводящих и других свойств графена, вызванных присоединением одиночного атома примеси к его поверхности [15,16]. Из данных, полученных при анализе свойств веществ с коллективизированными электронами, известно, что при адсорбции примеси с d - или f -электронами возможна сильная модификация электронных или магнитных свойств [17]. Наиболее известным фактом является, по-видимому, эффект Кондо — изменение проводящих свойств при внедрении примеси с изменением температуры.

Все перечисленные выше соображения делают задачу о рассмотрении коллективных эффектов, связанных с взаимодействием d - или f -примесей с электронами кристаллической решетки графена, т.е. РККИ-взаимодействием [13], без использования длинноволнового приближения для закона дисперсии весьма актуальной.

Отметим, что листы графена, обработанные водородной плазмой, можно использовать для создания устройств спинтроники, меняя магнитные свойства материала варьированием внешних параметров.

2. Основные уравнения

Рассмотрим двойной слой графена, состоящего из двух подрешеток a и b в приближении Хюккля [18], принимая во внимание динамику только π -электронов.

В этой модели учитываются кинетическая энергия электронов и энергия электронов примеси и пренебрегается энергией электронов внутренних оболочек атомов и электронов, участвующих в образовании химических связей σ -типа, а также энергией колебаний атомов кристаллической решетки.

Гамильтониан системы выберем в виде, стандартном для $s-d$ -обменных моделей [14],

$$H = H_0 + H_{\text{int}}, \quad (1)$$

$$H_0 = \sum_{k,\sigma} \varepsilon_k a_{k\sigma}^+ a_{k\sigma} + \sum_{k,\sigma} \tilde{\varepsilon}_k b_{k\sigma}^+ b_{k\sigma} + \omega_0 \sum_R S_R^z,$$

$$H_{\text{int}} = \sum_{pp'} J(\mathbf{q}) \sum_{\sigma\sigma'} S_q \sigma_{\sigma\sigma'} a_{p\sigma}^+ a_{p'\sigma'} + \sum_{pp'} J(\mathbf{q}) \sum_{\sigma\sigma'} S_q \sigma_{\sigma\sigma'} b_{p\sigma}^+ b_{p'\sigma'},$$

где $S_q = \sum_R \exp(i\mathbf{q}\mathbf{R}) S_R$, $\mathbf{q} = \mathbf{p} - \mathbf{p}'$, $J(q)$ — Фурье-образ потенциала взаимодействия d -примеси с электронами в зоне проводимости, $\sigma_{\sigma\sigma'}$ — матрицы Паули, частота ω_0 пропорциональна приложенному вдоль оси z внешнему постоянному магнитному полю, S_R — вектор спина примеси, находящейся в точке R , $a_{k\sigma}^+$, $a_{k\sigma}$, $b_{k\sigma}^+$, $b_{k\sigma}$ — операторы рождения и уничтожения электронов в зоне проводимости со спинами σ и с волновыми векторами \mathbf{k} , которые имеют законы дисперсии $\varepsilon(k) = \varepsilon_k$ и $\tilde{\varepsilon}(k) = \tilde{\varepsilon}_k$ соответственно. Для бислоя графена $\varepsilon_k = -\tilde{\varepsilon}_k$.

Закон дисперсии электронов бислоя графена представим в таком виде [19]

$$E_k^{++}(V) = \pm \sqrt{\varepsilon_{k,\text{adsorb}}^2 + \frac{t_{\perp}^2}{2} + \frac{V^2}{4} \pm \sqrt{\frac{t_{\perp}^4}{4} + (t_{\perp}^2 + V^2)\varepsilon_{k,\text{adsorb}}^2}}, \quad (2)$$

где $\varepsilon_{k,\text{adsorb}}$ — энергия электронов двойного слоя графена, измененная в результате присоединения атомов примесей, t_{\perp} — интеграл перескока электронов между слоями (~ 0.3 eV), V — электростатический потенциал взаимодействия между слоями графена.

Закон дисперсии электронов для однослойного примесного графена имеет следующий вид [20]:

$$\varepsilon_{k,\text{adsorb}} = \frac{1}{2} \left[\varepsilon_a + \varepsilon_k \pm \sqrt{(\varepsilon_a - \varepsilon_k)^2 + 4 \frac{N_{\text{imp}}}{N} - |V_{ka}|^2} \right].$$

Здесь ε_a — энергия примесного атома, ε_k — энергия электронов однослойного графена [5], V_{ka} — потенциал гибридизации, N — число элементарных ячеек, N_{imp} — число атомов примесей.

Метод Фрелиха для расчета косвенных взаимодействий [21] строится на предположении, что для матричных элементов операторов выполняется неравенство $|H_{\text{int}}| \ll |H_0|$, и состоит из двух этапов. Первый — это переход от представления (1) к новому представлению с

помощью унитарного преобразования $U = \exp(-L)$, где L — антиэрмитов оператор, удовлетворяющий условию

$$H_{\text{int}} + [H_0, L] = 0. \quad (3)$$

В новом представлении гамильтониан H приобретает вид

$$H \rightarrow \tilde{H} = H_0 + \frac{1}{2} [H_{\text{int}}, L] + O(H_{\text{int}}^3). \quad (4)$$

Решением операторного уравнения (3) будет следующее выражение [1]:

$$L = \frac{1}{i\hbar} \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \int_{-\infty}^0 e^{\varepsilon t} H_{\text{int}}(t) dt,$$

$$H_{\text{int}}(t) = \exp\left(\frac{iH_0 t}{\hbar}\right) H_{\text{int}} \exp\left(-\frac{iH_0 t}{\hbar}\right).$$

Второй этап заключается в усреднении выражения (4) для преобразованного гамильтониана \tilde{H} по состояниям поля-переносчика взаимодействия: в усреднении с равновесной матрицей плотности для электронной подсистемы. Так что член второго порядка теории возмущений $H_{ss} = \frac{1}{2} \langle [H_{\text{int}}, L] \rangle$, где угловые скобки обозначают среднее с равновесной матрицей плотности для электронной подсистемы, в разложении (4) перестает зависеть от операторов рождения и уничтожения электронов, но сохраняет зависимость от спиновых операторов различных атомов примеси и поэтому имеет смысл оператора косвенного взаимодействия.

После элементарных преобразований оператор L имеет вид

$$L = \sum_{pp'} J(\mathbf{q}) \sum_{\sigma} \left\{ \frac{(S_q^x - iS_q^y) a_{p,\sigma}^+ a_{p',-\sigma}}{\varepsilon_{p'} - \varepsilon_p + \hbar\omega_0} + \frac{(S_q^x - iS_q^y) b_{p,\sigma}^+ b_{p',-\sigma}}{\tilde{\varepsilon}_{p'} - \tilde{\varepsilon}_p + \hbar\omega_0} + \frac{(S_q^x + iS_q^y) a_{p,-\sigma}^+ a_{p',\sigma}}{\varepsilon_{p'} - \varepsilon_p - \hbar\omega_0} + \frac{(S_q^x + iS_q^y) b_{p,-\sigma}^+ b_{p',\sigma}}{\tilde{\varepsilon}_{p'} - \tilde{\varepsilon}_p - \hbar\omega_0} + \frac{S_q^z a_{p,\sigma}^+ a_{p',\sigma}}{\varepsilon_{p'} - \varepsilon_p} + \frac{S_q^z b_{p,\sigma}^+ b_{p',\sigma}}{\tilde{\varepsilon}_{p'} - \tilde{\varepsilon}_p} + \frac{S_q a_{p,-\sigma}^+ a_{p',-\sigma}}{\varepsilon_{p'} - \varepsilon_p} + \frac{S_q b_{p,-\sigma}^+ b_{p',-\sigma}}{\tilde{\varepsilon}_{p'} - \tilde{\varepsilon}_p} \right\}. \quad (5)$$

Подстановка (5) в (4) и термодинамическое усреднение дают

$$H_{ss} = \sum_{p_1 p_2 R_1 R_2} M_1 \exp(i(p_1 - p_2)(R_1 - R_2)) S_{R_1}^- S_{R_2}^- + \exp(i(p_2 - p_1)(R_1 - R_2)) S_{R_1}^- S_{R_2}^+ + \sum_{p_1 p_2 R_1 R_2} M_3 \exp(i(p_1 - p_2)(R_1 - R_2)) S_{R_1}^+ S_{R_2}^+ + \exp(i(p_2 - p_1)(R_1 - R_2)) S_{R_1}^+ S_{R_2}^- + \sum_{p_1 p_2 R} M_2 S_z^R, \quad (6)$$

где введены следующие обозначения констант обменного взаимодействия:

$$M_1 = \frac{1}{2} J_{p_1-p_2} J_{p_2-p_1} \left\{ \frac{\exp(-\beta \varepsilon_{p_1}) - \exp(-\beta \varepsilon_{p_2})}{\varepsilon_{p_1} - \varepsilon_{p_2} + \hbar \omega_0} + \frac{\exp(-\beta \tilde{\varepsilon}_{p_1}) - \exp(-\beta \tilde{\varepsilon}_{p_2})}{\tilde{\varepsilon}_{p_1} - \tilde{\varepsilon}_{p_2} + \hbar \omega_0} \right\},$$

$$M_2 = \hbar J_{p_1-p_2} J_{p_2-p_1} \left\{ \frac{2\hbar \omega_0 \exp(-\beta \tilde{\varepsilon}_{p_1}) (1 - \exp(-\beta \tilde{\varepsilon}_{p_2}))}{(\hbar \omega_0)^2 - (\tilde{\varepsilon}_{p_2} - \tilde{\varepsilon}_{p_1})^2} + \frac{2\hbar \omega_0 \exp(-\beta \tilde{\varepsilon}_{p_1}) (1 - \exp(-\beta \tilde{\varepsilon}_{p_2}))}{(\hbar \omega_0)^2 - (\tilde{\varepsilon}_{p_2} - \tilde{\varepsilon}_{p_1})^2} \right\},$$

$$M_3 = \frac{1}{2} J_{p_1-p_2} J_{p_2-p_1} \left\{ \frac{\exp(-\beta \varepsilon_{p_1}) - \exp(-\beta \varepsilon_{p_2})}{\varepsilon_{p_1} - \varepsilon_{p_2} - \hbar \omega_0} + \frac{\exp(-\beta \tilde{\varepsilon}_{p_1}) - \exp(-\beta \tilde{\varepsilon}_{p_2})}{\tilde{\varepsilon}_{p_1} - \tilde{\varepsilon}_{p_2} - \hbar \omega_0} \right\}.$$

Последнее слагаемое в (6) описывает хорошо известный в теории магнитного резонанса сдвиг Найта [1], а другие слагаемые отвечают за косвенное взаимодействие.

Обменное взаимодействие локализованных спинов примесей будем рассматривать в прямом пространстве, для этого применим обратное преобразование Фурье (в обратном пространстве интегрирование велось по зоне Бриллюэна)

$$J_{\text{eff}} = \int_0^{\frac{\pi}{3a}} dk_{x1} \int_0^{\frac{\sqrt{3}}{3} k_{x1}} dk_{y1} \int_0^{\frac{\pi}{3a}} dk_{x2} \int_0^{\frac{\sqrt{3}}{3} k_{x2}} M_{1,3}(k_{x1}, k_{y1}, k_{x2}, k_{y2}) \times \exp\{i(k_{x1} - k_{x2})x\} \exp\{i(k_{y1} - k_{y2})y\} dk_{y2}.$$

Отметим, что в данной зависимости уже неявно содержится осциллирующая часть и, оценивая интегралы методом перевала, можно показать наличие экспоненциального спада, т.е. сильного уменьшения величины косвенного взаимодействия при увеличении расстояний между примесями. Отметим, что подобное поведение всегда характерно для механизмов косвенного обмена через электроны проводимости и обусловлено локальным характером взаимодействия электронов с атомами примесей.

3. Результаты численного анализа

Ввиду достаточно сложной зависимости получившегося оператора косвенного взаимодействия от параметров задачи найденные величины были проанализированы численно. Так, на рис. 1 представлена типичная зависимость константы обменного взаимодействия (имеющей

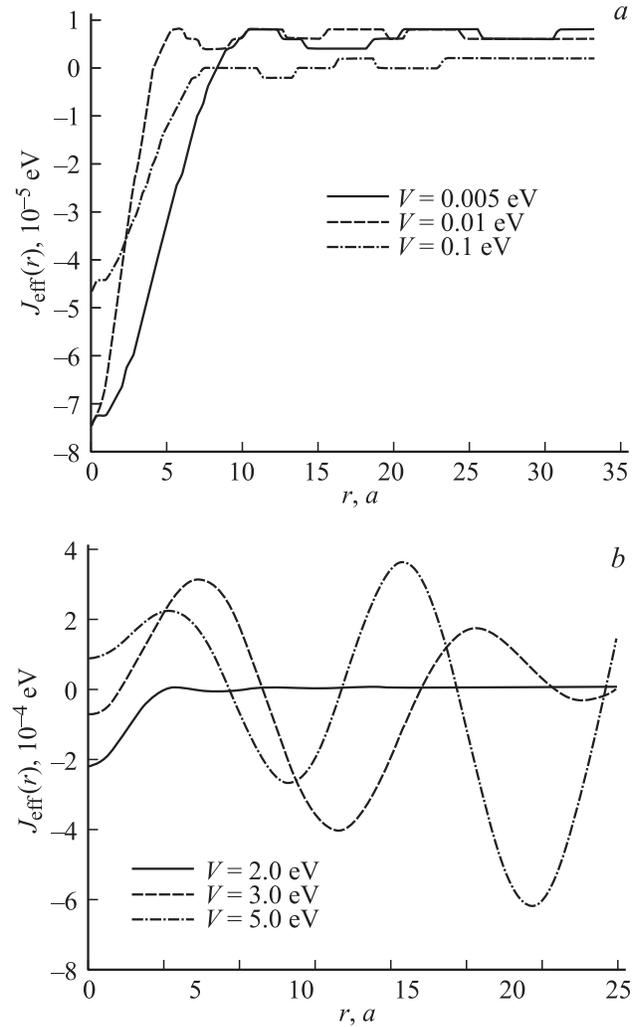


Рис. 1. Зависимость константы обменного взаимодействия J_{eff} от расстояния r для различных значений электростатического потенциала V . Расстояние между локализованными спинами на всех рисунках выражается в единицах постоянной решетки $a = 2.49 \text{ \AA}$.

смысл энергии системы, зависящей только от ориентации примесного спина) между компонентами примесного спина от расстояния для различных значений электростатического потенциала.

Из приведенной зависимости видно, что при малых внешних электрических полях (рис. 1, а) косвенное взаимодействие между спинами с расстоянием убывает до нуля, приобретая ферромагнитный характер, а с увеличением поля (рис. 1, б) характер взаимодействия имеет осциллирующий вид (о чем уже упоминалось выше и что связано с локальным характером взаимодействия электронов с атомами примесей), что указывает на возможное чередование областей ферромагнитной и антиферромагнитной упорядоченности. Отметим также, что разный ход кривых, приведенных на рис. 1, связан с сильной зависимостью закона дисперсии электронов (2) от приложенного напряжения.

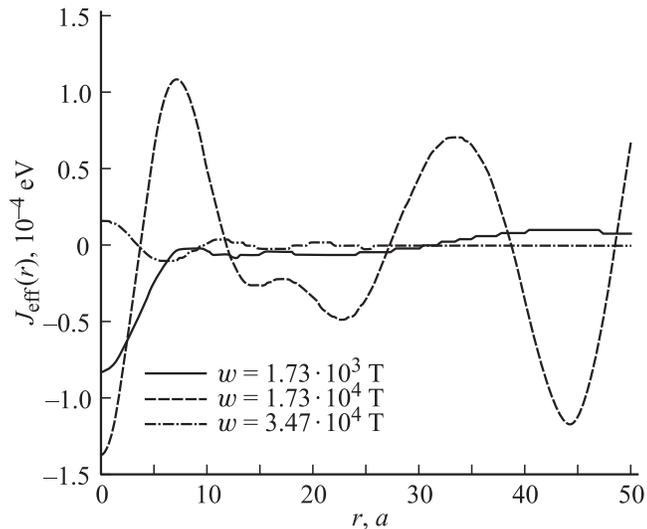


Рис. 2. Зависимость константы обменного взаимодействия J_{eff} от расстояния r для различных значений внешнего магнитного поля w .

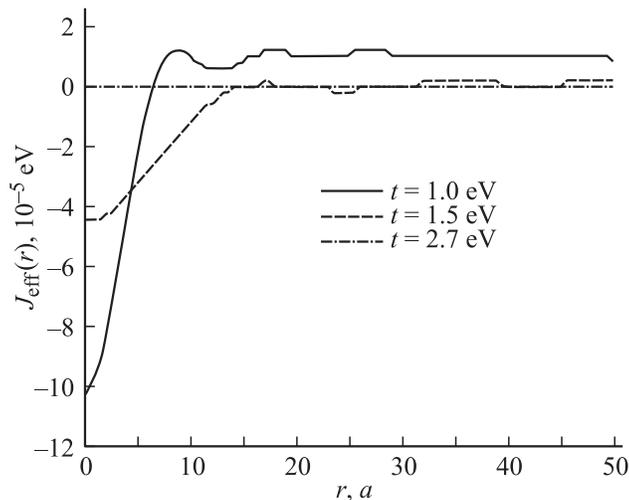


Рис. 3. Зависимость константы обменного взаимодействия J_{eff} от расстояния r для различных значений интеграла перескока t .

Характер зависимости константы обменного взаимодействия от расстояния при различных магнитных полях, которая представлена на рис. 2, аналогичен характеру зависимости при различных электрических полях: для малых полей косвенное взаимодействие спинов убывает с расстоянием, для больших приобретает периодический характер. Отметим, что данный результат согласуется с результатами по расчету РККИ-взаимодействия в других средах. Полученные результаты дают интересную возможность формирования областей с различным типом упорядоченности (ферро- или антиферромагнитным) примесных атомов при помощи комбинаций внешних постоянных электрических и магнитных полей, что несомненно важно для приложений.

На рис. 3 представлена зависимость константы обменного взаимодействия от расстояния для различных значений интеграла перескока. Отметим, что, хотя для типичных графеновых систем данная величина составляет 2.7 eV и приведенный результат имеет чисто теоретический характер, полученная зависимость демонстрирует, что косвенное взаимодействие спинов определяется в первую очередь законом дисперсии электронов и сильно зависит от энергии электронов в зоне проводимости.

4. Заключение

Особенность РККИ-взаимодействия примесных атомов на поверхности бислоя графена, исследуемого в настоящей работе, заключается в том, что было рассмотрено обменное взаимодействие на основании полного (включая и коротковолновую часть) спектра электронов кристаллической решетки. Данное дисперсионное соотношение включает импульсы электронов во всей зоне Бриллюэна.

В заключение сформулируем основные выводы работы.

1) Изучено РККИ-взаимодействие в примесном бислое графена, в качестве примеси использованы адсорбированные одновалентные атомы водорода. Аналогичный подход можно использовать при рассмотрении адсорбции атомов щелочных металлов.

2) Из полученных графиков видно, что на малых расстояниях предпочтительным является антиферромагнитное упорядочение спинов примесей, а при увеличении расстояния характер взаимодействия становится ферромагнитным.

3) Увеличение напряженности электрического поля приводит к сильно осциллирующей зависимости косвенного взаимодействия спинов примесей от расстояния, что может быть связано с резонансными переходами электронов между расщепленными уровнями.

4) Увеличение внешнего магнитного поля также приводит к неоднородному распределению примесных спинов, фактически наблюдается образование доменных структур, чередование областей ферромагнитной и антиферромагнитной упорядоченности.

Список литературы

- [1] А. Ферт. УФН. **178**, 1336 (2008).
- [2] I. Zutic, J. Fabian, S. Das Sarma. Rev. Mod. Phys. **76**, 323 (2004).
- [3] Ю.В. Гуляев, П.Е. Зильберман, А.И. Панас, Э.М. Эпштейн. УФН **179**, 359 (2009).
- [4] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S.V. Dubonos, I.V. Grigorieva, A.A. Firsov. Science **306**, 666 (2004).
- [5] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, M.I. Katsnelson, I.V. Grigorieva, A.A. Firsov. Nature **438**, 197 (2005).
- [6] D. Henwood, J.D. Carey. Phys. Rev. B **75**, 245 413 (2007).

- [7] A. Lugo-Solis, I. Vasiliev. Phys. Rev. B **76**, 235 431 (2007).
- [8] R.R. Biswas, S. Sachdev. Phys. Rev. B **76**, 205 122 (2007).
- [9] M.I. Katsnelson. Phys. Rev. B **74**, 201 401(R) (2006).
- [10] D.A. Abanin, A.V. Shytov, L.S. Levitov. ArXiv: 1004.3678v2 (2010).
- [11] V.V. Cheainov, O. Syljuasen, B.L. Altshuler, V.I. Fal'ko. ArXiv: 1002.2330v1 (2010).
- [12] B. Uchoa, T.G. Rappoport, A.H. Castro Neto. ArXiv: 1006.2512v1 (2010).
- [13] A.M. Black-Schaffer. Phys. Rev. B **82**, 073 409 (2010).
- [14] B. Uchoa, A.H. Castro Neto. Phys. Rev. Lett. **98**, 146 801 (2007).
- [15] V.K. Dugaev, V.I. Litvinov, J. Barnas. Phys. Rev. B **74**, 224 438 (2006).
- [16] S. Saremi. Phys. Rev. B **76**, 184 430 (2007).
- [17] Р. Уайт. Квантовая теория магнетизма. Мир, М, (1985). 304 с.
- [18] Н.Ф. Степанов. Квантовая механика и квантовая химия. Мир, М. (2001). 519 с.
- [19] T. Stauber, N.M.R. Peres, F. Guinea, A.H. Castro Neto. Phys. Rev. B **75**, 115 425 (2007).
- [20] A.V. Pak, N.G. Lebedev. Abs. VI Int. conf. „Material structure and micromechanics of fracture“. Brno (2010). P. 149.
- [21] Ю.А. Изюмов, М.И. Кацнельсон, Ю.Н. Скрябин. Магнетизм коллективизированных электронов. Физматлит, М. (1994). 368 с.