

01;05

## Влияние особенностей атомной структуры наночастиц Ni на квантовые флуктуации их магнитных моментов

© А.Б. Шевченко<sup>1</sup>, А.Б. МельникИнститут металлофизики им. Г.В. Курдюмова НАН Украины,  
03680 Киев, Украина<sup>1</sup>e-mail: abs@imp.kiev.ua

(Поступило в Редакцию 5 октября 2005 г.)

Исследован процесс квантового туннелирования магнитных моментов наночастиц Ni с различными типами пространственных атомных структур. Показано, что температура кроссовера квантовых флуктуаций наночастиц испытывает „скачок“ при переходе от частиц со структурой икосаэдра к частицам с ГЦК атомной структурой. Определена скорость магнитных квантовых флуктуаций.

PACS: 75.75.+a

Исследование физических свойств малых ферромагнитных частиц с характерными размерами  $\leq 10$  nm (наночастицы) представляет собой значительный интерес как с фундаментальной, так и прикладной точек зрения. Последнее особенно актуально в связи с бурно развивающимися в настоящее время нанотехнологиями. В этой связи перспективной является идея использования спиновых состояний ферромагнитных наночастиц в качестве элементов логики квантового компьютера [1]. Адекватность считывания информации такого компьютера определяется релаксаций магнитных моментов  $\mathbf{M}$  наночастиц. Причем в области низких температур  $T \ll 1$  K актуален ее квантовый характер. Физическим механизмом данного процесса является туннелирование  $\mathbf{M}$  через потенциальный барьер, величина которого зависит от энергии магнитной анизотропии частицы  $E_a$ . Теоретическим аспектам этого вопроса посвящены работы [2,3], в них также получено выражение для температуры кроссовера  $T_q$ , соответствующей переходу от термоактивированных к квантовым флуктуациям  $\mathbf{M}$ . Форма частиц при этом полагается сферической. Однако для наночастиц заметную роль играют особенности их пространственной атомной структуры. Так, наночастицы Ni с икосаэдрической атомной структурой являются более магнитомягкими материалами, чем частицы с ГЦК структурой [4]. Данный факт является следствием увеличения  $E_a$  при переходе от икосаэдрических к ГЦК частицам. Естественно предположить, что указанное обстоятельство отражается и на процессе туннелирования  $\mathbf{M}$ . Рассмотрению этого вопроса для наночастиц Ni, на основе ВКБ (Венцеля–Крамерса–Бриллюэна) приближения и посвящена настоящая работа.

Как известно [4], кластеры Ni с икосаэдрической атомной структурой энергетически предпочтительней частиц с ГЦК структурой при количестве атомов  $N$  в частице (рассматриваются частицы с полностью заполненными оболочками), равном 13, 55, 147, 309 (характерные размеры 0.5–2 nm). В то же время ГЦК структура имеет место для частиц с  $N = 321, 369, 381, 429, 459, 531 \dots$  (1.8–2.16 nm). Осями легкого

намагничивания (ОЛН) икосаэдрических и ГЦК частиц являются поворотные оси пятого и второго порядков их первых координационных сфер, пространственными субъединицами которых выступают икосаэдр и кубооктаэдр соответственно [4]. Физической величиной, отражающей особенности атомной структуры наночастиц и характеризующей процессы их переманичивания, являются пороговые магнитные поля  $H_c$ . Расчеты показывают [5], что значения  $H_c$  испытывают „скачок“ при переходе от частиц со структурой икосаэдра ( $H_{c1}$ ,  $N = 309$ ) к ГЦК ( $H_{c2}$ ) частицам ( $N = 321$ ):  $H_{c2}/H_{c1} \approx 3$ , где  $H_{c2} = 1.43 \cdot 10^5$  A/m. Дальнейшее увеличение числа атомов в ГЦК частице изменяет  $H_{c2}$  незначительно. Значения же  $H_{c1}$  для кластеров  $N = 13$  и 55 составляют  $8 \cdot 10^4$  и  $6.4 \cdot 10^4$  A/m при  $m = 1\mu_B$  ( $m$  — атомный магнитный момент,  $\mu_B$  — магнетон Бора) и  $m = 0.8\mu_B$  соответственно. При этом величины  $m$  для частиц Ni с  $N \geq 150$  можно полагать  $m = 0.6\mu_B$  [6].

Зная  $H_c$ , запишем энергию магнитной анизотропии наночастиц в следующем виде

$$E_a = -K\mathbf{e}_z^2, \quad (1)$$

где  $K = NmH_c/2$  — константа магнитной анизотропии (рассматриваем когерентное поведение спинов),  $\mathbf{e}_z$  — единичный орт оси  $OZ$  декартовой системы координат, направленной вдоль ОЛН частицы.

Заметим, что выражение (1) применительно к исследуемым наночастицам имеет модельный вид. Данное обстоятельство отражается на форме кривой намагничивания, которое в нашей работе не рассматривается. В то же время из выражения (1) следуют значения пороговых магнитных полей.

Направив внешнее магнитное поле  $\mathbf{H}$  вдоль оси  $OX$ , запишем функцию Лагранжа системы

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2}J\dot{\theta}^2 - E_a - E_H, \quad (2)$$

где  $J$  — эффективный момент инерции наночастицы,  $E_a = K \sin^2 \theta$ ,  $E_H = MH \sin \theta \cos \varphi$ ,  $\theta$ ,  $\varphi$  — полярный и азимутальный углы соответственно.

Отметим, что поле  $H$ , нарушая аксиальную симметрию гамильтониана системы, обеспечивает квантовые флуктуации магнитного момента [3].

Рассмотрим флуктуации  $\mathbf{m}$  при полях  $H$ , близких к  $H_c$ , степень близости к которому будем характеризовать параметром  $\varepsilon = (H_c - H)/H_c \ll 1$ . Очевидно, что в таком случае прецессия вектора  $\mathbf{m}$  происходит вблизи оси  $OX$  системы координат, т. е. угол  $\varphi$  мал. Тогда анализ „потенциальной“ энергии в (2) при  $\varphi = 0$  показывает, что энергия имеет максимум  $E_{\max} = K - 2KH/H_c$  при  $\theta = \pi/2$ . Кроме того, в системе существуют состояния  $E_{\min} = -KH^2/H_c$  при  $\theta = \frac{\pi}{2} \pm \sqrt{2\varepsilon}$ , разделенные энергетическим барьером  $\Delta E = E_{\max} - E_{\min} = K\varepsilon^2$ . В таком случае исходя из общих положений ВКБ приближения вероятность туннелирования  $\mathbf{m}$  в единицу времени определяется следующим образом:

$$W = \omega_0 \exp \left\{ -\frac{2}{\hbar} \int d\theta |p(\theta)| \right\}, \quad (3)$$

где  $\omega_0 = \sqrt{\frac{2K}{J}}$  — частота колебаний вблизи положения равновесия, получаемая из соотношения  $\frac{1}{2}J\omega_0^2 = K$ ,  $p(\theta) = \partial \mathcal{L} / \partial \dot{\theta} = J\dot{\theta}$  — обобщенный импульс системы.

После варьирования (2) по  $\theta$  и интегрирования полученного дифференциального уравнения при  $\dot{\theta} \rightarrow 0$ ,  $\theta \rightarrow \frac{\pi}{2} \pm \sqrt{2\varepsilon}$ ,  $t \rightarrow \mp\infty$ , находим

$$p(\theta) = \pm \sqrt{2JKi} (\sin \theta - H/H_c). \quad (4)$$

Выражение для  $J$  получаем с учетом связи между орбитальным  $\mathbf{L}$  и магнитным моментами наночастицы, прецессия которого при  $\varepsilon \ll 1$  обусловлена приложенным полем  $\mathbf{H}$

$$\frac{L^2}{2J} = NmH, \quad (5)$$

где  $L = \gamma^{-1}Nm$ ,  $\gamma\mu_B/\hbar$  — гиромангнитное отношение,  $g$  — атомный фактор Ланде, который в нашем случае полагаем 2.18 [6].

Определив из (5)  $J$ , после подстановки полученного выражения в (4), (3) для  $W$  окончательно имеем

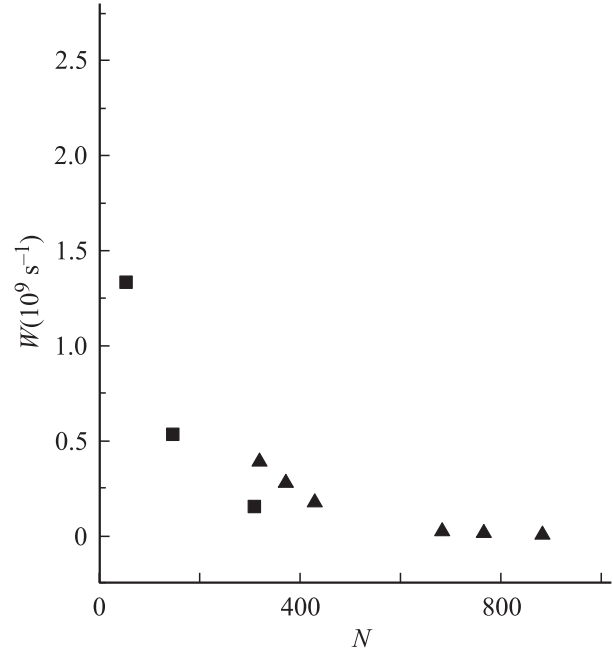
$$W = \frac{g\mu_B}{\hbar} H_c \exp \left\{ -\frac{8Nm\varepsilon^{3/2}}{3g\mu_B} \right\}. \quad (6)$$

Сразу отметим, что из (2), (4), (5) и уравнения Ландау–Лифшица для динамики  $\mathbf{m}$  следует оценка для угла  $\varphi$ , которая согласуется с положением о его малости:  $\sin \varphi \sim \varepsilon$ .

Выражая показатель экспоненты в (6) через величину потенциального барьера  $\Delta E$ , из (6) определяем  $T_q$  — температуру кроссовера, при которой имеют место квантовые флуктуации магнитных моментов наночастиц

$$T_q = \frac{3g\mu_B}{16k_B} H_c \varepsilon^{1/2}, \quad (7)$$

где  $k_B$  — постоянная Больцмана.



Скорость релаксации магнитных моментов наночастиц Ni с различным типом атомной структуры. ▲ — икосаэдрические частицы, ■ — ГЦК частицы,  $\varepsilon = 0.05$ .

Нетрудно видеть, что температура кроссовера испытывает скачок, определяемый величиной порогового поля, при переходе от икосаэдрических ( $N = 309$ ) к ГЦК частицам ( $N = 321$ ):  $T_{q2} = T_{q1}H_{c2}/H_{c1} \approx 3T_{q1}$ . Факт увеличения  $T_q$  для ГЦК частиц Ni по сути является следствием большей энергии анизотропии ГЦК частиц по отношению к кластерам со структурой икосаэдра. Туннелирование  $\mathbf{m}$  в этом случае происходит через более высокий потенциальный барьер, что характеризуется большими значениями  $T_q$ . При  $\varepsilon = 5 \cdot 10^{-2}$  из (7) имеем  $T_q = 1.1 \cdot 10^{-2}$  К. Значения температур кроссовера икосаэдрических частиц при том же  $\varepsilon$ :  $6.1 \cdot 10^3$  ( $N = 13$ ),  $5 \cdot 10^{-3}$  ( $N = 55$ ),  $3.7 \cdot 10^{-3}$  К ( $N = 147, 309$ ).

Отметим, что если в выражении (7)  $g\mu_B$  заменить на  $\gamma\hbar$ ,  $H_c$  на  $2K/Nm$ , а также перейти к намагниченности и удельной анизотропии, то получим выражение которое согласуется с соответствующим выражением [3] для частиц с легкой осью и поперечной магнитной анизотропией. В нашем случае роль трудной оси играет поле  $\mathbf{H}$ .

Анализ выражения (6) показывает, что скорость туннелирования магнитных моментов икосаэдрических наночастиц Ni в силу экспоненциальной зависимости  $W$  от  $\varepsilon^2$  достаточно слабо зависит от  $N$  при  $\varepsilon \leq 10^{-2}$  и составляет  $g\mu_B H_c / \hbar \sim 10^9 \text{ с}^{-1}$ . Такой же порядок имеет скорость туннелирования и ГЦК частиц Ni при  $N < 10^3$  (2.17 nm). Заметным влияние поля на  $W$  становится при  $10^{-2} < \varepsilon \sim 10^{-1}$ . Так, для икосаэдрических частиц при  $\varepsilon = 5 \cdot 10^{-2}$ ,  $W_1 = (2.5-0.14) \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$  ( $N = 13-309$ ). В свою очередь,  $W_2 = (4-0.7) \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$  ( $N = 321-531$ ). Дальнейшее увеличение количества атомов в ГЦК частице, в силу возрастания с ростом  $N$  энергии анизотропии приводит к последующему умень-

шению  $W$  (см. рисунок). Для ГЦК кластера с  $N = 1553$  ( $3.17 \text{ nm}$ )  $W$  составляет уже  $1.6 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ , т.е. такая наночастица перемагнитится в течение  $6.25 \cdot 10^{-5} \text{ s}$ . Время перемагничивания икосаэдрических частиц при том же  $\varepsilon$  составляет  $\sim 10^{-10} - 10^{-9} \text{ s}$ . Суммируя вышесказанное, нетрудно заключить, что характерные особенности атомных структур наночастиц заметно влияют на процесс квантового туннелирования их магнитных моментов. При этом, варьируя величины внешних магнитных полей, прикладываемых к частицам, можно менять в достаточно широком диапазоне физические параметры, которые его описывают.

## Список литературы

- [1] *Held G.A., Grinstein G.* // Appl. Phys. Lett. 2001. Vol. 79. N 10. P. 1501–1503.
- [2] *Чудновский Е.М.* // ЖЭТФ. 1979. Т. 77. № 5 (11). С. 2157–2161.
- [3] *Chudnovsky E.M., Gunter L.* // Phys. Rev. Lett. 1988. Vol. 60. N 8. P. 661–664.
- [4] *Шпак А.П., Шевченко А.Б., Мельник А.Б.* // Металлофиз. новейшие технол. 2003. Т. 25. № 10. С. 1249–1263.
- [5] *Shpak A.P., Shevchenko A.B., Melnik A.B.* // Mater. Sci. Forum. 2001. Vol. 373–376. P. 47–50.
- [6] *Billas I.M.L., Chatelian A. and de Heer W.A.* // Science. 1994. Vol. 265. P. 1682–1684.