

含铁磁颗粒的颗粒膜自旋激发弛豫研究*

吴 强^{1)†} 郑瑞伦²⁾

¹⁾ 渝西学院物理学与电子信息工程系, 永川 402168)

²⁾ 西南师范大学物理学院, 北碚 400715)

(2004 年 11 月 11 日收到, 2004 年 12 月 16 日收到修改稿)

应用 $s-d$ 交换作用模型, 在对自旋格林函数 $s-d$ 交换相互作用单环近似下, 求出了含铁磁纳米颗粒的颗粒膜中自旋激发弛豫, 并以 $(a-c)H_{1-x}Co_x$ 颗粒膜为例, 探讨了自旋激发弛豫随温度的变化规律. 结果表明, 经自旋极化激发实现的自旋激发弛豫过程与温度无关, 而经热激活的自旋激发弛豫过程与温度有关.

关键词: 自旋激发弛豫, 颗粒膜, 铁磁颗粒

PACC: 7530D, 7510J, 7650

1. 引 言

磁性颗粒膜因具有巨磁阻效应、磁阻随应力和温度的各向异性等奇特性质而引起人们的关注^[1,2]. 近年来, 人们在铁磁共振谱(Φ MP)和自旋共振谱(CBP)实验研究中, 发现了一些自旋激发弛豫的现象^[1,2]. 2000 年 Жуцев 等人用自旋波谱(CBP)方法测出了含 Co 颗粒的 $a-c:H$ 薄膜和 $Co_{86}Nb_{12}Ta_2$ 颗粒的 SiO_2 薄膜中的磁弛豫^[3,4]. 发现金属颗粒的费米能级与基底导带的活动性边界之差 Δ 与 kT 相比较, 前者 $\Delta \ll kT$, 而后者 $\Delta \gg kT$, 自旋激发弛豫实际上随温度变化很小. 对这些结果, 文献[5]给出了基底电子和自旋相互作用磁性系统的绝热近似值, 至今在理论上未得到圆满的解释. 本文将应用 $s-d$ 交换作用模型, 求出含铁磁颗粒的颗粒膜的自旋激发弛豫, 并探讨它随温度的变化规律.

2. 基本方程

对于基底电子和磁性颗粒组成的自旋相互作用系统, 应用 $s-d$ 交换作用模型, 在对自旋格林函数 $s-d$ 交换相互作用单环近似下, 可得到描述自旋激发弛豫的方程^[6]. 为简便起见, 认为颗粒的局域电子处

于 d 态, 其自旋激发用海森堡模型描述, 颗粒较大使整个颗粒系统处于铁磁状态. 同时认为基底的局域电子处于 s 态. 颗粒的 d 电子系统与基底的 s 电子系统之间有交换相互作用, 设交换常数 $J > 0$. 忽略 s 系统中各电子的相互作用. 这时, 整个系统的哈密顿 H 为

$$H = H_s^{(s)} + H_d^{(o)} + H_d^{(int)} + H_{sd}, \quad (1)$$

式中 $H_s^{(s)}$ 是基底 s 电子系统的哈密顿, $H_d^{(o)}$ 是颗粒的 d 态电子系统与外场 H 的相互作用哈密顿, $H_d^{(int)}$ 为颗粒 d 态电子系统交换相互作用哈密顿, H_{sd} 为颗粒 d 电子系统与基底 s 电子系统相互作用哈密顿.

对基底电子和颗粒自旋引进温度格林函数, 在自洽近似下对 $\tau-\tau'$ 作傅里叶变换后, 由戴松方程得到自旋格林函数的一级近似后, 将得到描述颗粒结构自旋激发的自旋格林函数的积分方程^[6]

$$\begin{aligned} & K_{dd}^{(1)-+}(l, l', \omega_n) \\ &= \sum_{dd}^{(0)}(l, l', \omega_n) + \sum_2 \sum_3^{(0)-+}(1, 2, \omega_n) \\ & \times \left[\frac{1}{2} \beta K(2-3) + \beta^2 \sum_{p, p', \lambda, \lambda'} \mathcal{K}(p, \lambda, 2) \right. \\ & \times \sum_s^{(1)-+}(p, p', \lambda, \lambda', \omega_n) \mathcal{K}(p', \lambda', 3) \left. \right] \\ & \times K_{dd}^{(1)-+}(3, l', \omega_n). \end{aligned} \quad (2)$$

对自旋极化激发, 计算包含有 J 和 $\sum_s^{(1)-+}$ 的

* 重庆市教育委员会科学技术研究项目(批准号 031202)资助的课题.

† E-mail: wuq@cqwu.net

项,可得到描述自旋激发弛豫的方程

$$K_{dd}^{(1)-+}(r, r', \omega_n) = K^{(0)}(r, \omega_n) \delta(r - r') + (A + B) K_{dd}^{(1)-+}(r, r', \omega_n), \quad (3)$$

其中

$$BK_{dd}^{(1)-+}(r, r', \omega_n) = \beta^2 K^{(0)}(r, \omega_n) \mathcal{K}(r) \sum_{p, \lambda} \frac{1}{V_a} \int \mathcal{K}(p, \lambda, r) \times \sum_{ss}^{(1)-+}(p, p', \lambda, \lambda', \omega_n) \times \mathcal{K}(p, \lambda, r'') K_{dd}^{(1)-+}(r'', r', \omega_n) dr'', \quad (4)$$

式中的 V_a 是颗粒原胞体积, 积分沿颗粒体积 V 范围进行, J 为交换作用, $K_{dd}^{(1)-+}(r, r', \omega_n)$ 是颗粒 d 电子系统温度格林函数的一级修正. $\sum_{ss}^{(1)}$ 是未被相互作用线隔开的图线描述的本征能量. 求和 $\sum_{p, \lambda}$ 是对基底单电子所有状态 $|p, \lambda\rangle$ 求和.

按照固体理论, 自旋激发弛豫由以自旋振动函数 $\chi(r, q)$ 为基矢的表象中, 温度格林函数极点的虚数部分决定. 为此, 在以 $\chi(r, q)$ 基矢的表象中, 写出温度格林函数为

$$K_{dd}^{(1)-+}(q, \omega_n) \delta(q - q') = \iint_V \chi^*(r, q) K_{dd}^{(1)-+}(r, r', \omega_n) \times \chi(r', q') dr' dq'.$$

将(3)式移项得

$$(1 - A - B) K_{dd}^{(1)-+}(r, r', \omega_n) = K^{(0)}(r, \omega_n) \delta(r - r'). \quad (5)$$

将(4)在 $\chi(r, q)$ 表象中表示并作 $i\omega_n \rightarrow \omega + i\delta \text{sign}\omega$ 解析延拓, 其极点虚数部分等于

$$\text{Im} \int_V \chi^*(r, q) (1 - A - B) \chi(r, q) dr \Big|_{i\omega_n \rightarrow \omega + i\delta \text{sign}\omega}.$$

注意到 A 的表示式

$$AK_{dd}^{(1)-+}(r, r', \omega_n) = \frac{1}{(2\pi)^3} \iint \alpha(r, r'', q, \omega_n) e^{iq \cdot (r - r'')} \times K_{dd}^{(1)-+}(r'', r', \omega_n) dr'' dq,$$

和 B 的表达式(4), 得到自旋弛豫为

$$\begin{aligned} \hbar\lambda(\omega, q) &= 2\beta S^z \sum_{p, \lambda} \left| \mathcal{K}(p, \lambda, q) \right|^2 \\ &\times \text{Im} \sum_{ss}^{(1)-+}(p, p', \lambda, \lambda', \omega_n) \Big|_{i\omega_n \rightarrow \omega + i\delta \text{sign}\omega} \\ &= 4\pi S^z \sum_{p, \lambda} \left| \mathcal{K}(p, \lambda, q) \right|^2 \\ &\times m_\lambda^{(p)} \delta(\hbar\omega - E_\lambda^{(p)}). \end{aligned} \quad (6)$$

为简单起见, 现只对长波近似(q 很小)情况作讨论. 由于 $J \ll I$, 此时颗粒自旋激发将由自旋极化决定. 在此激发中颗粒自旋方向会同同时改变, 基底中的电子将从一个分立态(p, λ)的自旋能级向另一个具有自旋反转的分立态跃迁. 电子态可以是在能量上处于基底中深能级局域电子态(图 1(a)), 或者是由于电子从颗粒中热激活而生成的颗粒导带的那种状态(图 1(b)). 由上述出发, 可得到在这两种情况的自旋激发弛豫.

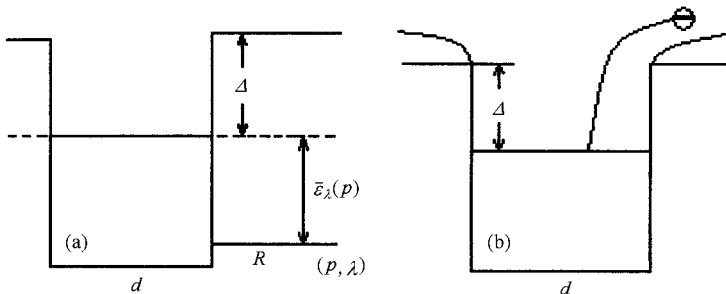


图 1 (a) 基底中深能级局域电子态 (b) 颗粒热激活时电子能量的变化

3. 由基底中深局域态能级间跃迁决定的弛豫

为了求得弛豫的具体公式, 特假设:

1) 颗粒结构中局域态 p 的能量分布和空间位置可以用单位体积中的能级密度 $g(\epsilon_\lambda^{(p)}, r)$ 表征. 引入能级密度后可将颗粒的自旋激发弛豫(6)式转化为对整个颗粒平均的颗粒结构的自旋激发弛豫. 并且(6)式中对 p 和 λ 的求和将转化为对个体积范

围和对整个具有态密度为 $g(\epsilon, r)$ 的局域态能级的积分. 由于(6)式中因子 $m_{\lambda}^{(p)}$ 的存在, 对弛豫的基本贡献就是费米能级附近能量为 $2kT$ 的局域态. 并假定, 在 $2kT$ 范围内, 能级均匀分布, 即 $g(\epsilon_{\lambda}, T) = g = \text{常数}$.

2) 在(6)式中的交换相互作用由对颗粒体积 V 和对基底范围积分决定, 即

$$\mathcal{K}(p, \lambda, q) = \int_V dr' \int dr \varphi_{\lambda}^{(p)*}(r) \times \mathcal{K}(r - r') \varphi_{\lambda}^{(p)}(r) \chi(r', q).$$

设局域态波函数 $\varphi_{\lambda}^{(p)}$ 具有类氢特征, 则相互作用 $\mathcal{K}(r - r')$ 具有短程特征, 函数 $\mathcal{K}(p, \lambda, q)$ 在 $q \rightarrow 0$ 时, 将随距离增大而按指数规律衰减, 即 $\mathcal{K}(p, \lambda, q) = J_0 e^{-\xi_{\lambda}^{(p)} R}$. 这里的 $\xi_{\lambda}^{(p)}$ 是具有局域态 (p, λ) 的颗粒自旋相互作用半径的倒数, R 是类氢态 p 的中心到颗粒边界的距离. 在对 N 个所有能级求平均时, 也假定 J 以平均倒数半径 $\bar{\xi} = \sum_{p, \lambda} \xi_{\lambda}^{(p)}$ 按指数规律衰减. 即 $J \sim \exp(-\bar{\xi} R)$.

3) 设颗粒间距 $l \gg 1/\bar{\xi}$. 这时可以不考虑颗粒之间的相互作用, 同时, 基底导带顶与金属费米能级之差 $\Delta \gg kT$. 此时可将对颗粒的积分上限取为无穷大, 对局域态能量的积分上限也取为无穷大.

在上述假定下, 颗粒结构自旋激发阻尼将等于

$$\begin{aligned} \hbar\nu(\omega) &= 2\pi S^z_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\epsilon \int_0^{\infty} dr \cdot 4\pi r^2 \bar{g} J_0^2 e^{-2\bar{\xi}r} \\ &\times \left[\frac{1}{e^{i(\epsilon - E/2)} + 1} - \frac{1}{e^{i(\epsilon + E/2)} + 1} \right] \delta(\hbar\omega - E) \\ &= \frac{2\pi^2 \bar{g} (\hbar\omega - g\mu_B H) \hbar\omega}{\xi^3 S^z_0} \\ &\times \ln^2 \frac{2J_0 S^z_0}{\hbar\omega - g\mu_B H}, \end{aligned} \quad (7)$$

这里 $E = 2 S^z_0 e^{-\bar{\xi}r} + g\mu_B H$.

由(7)式可以看出, 当 $\hbar\omega < g\mu_B H$ 和 $\hbar\omega > g\mu_B H + 2 S^z_0 J_0$ 时, 阻尼为零. 当 $\hbar\omega = g\mu_B H + 2e^{-2\bar{\xi}r} J_0$ 时, 阻尼最大, 其最大值为

$$\hbar\nu_{\max} = 16\pi^2 g J_0 / e^2 \xi^3 \quad (7')$$

由(7)还可以看出, 决定基底中深能级局域态能级和自旋反转的弛豫系数与温度无关.

4. 在热激活条件下决定颗粒中电子能级之间跃迁的弛豫

现研究金属颗粒的费米能级处于比基底导带底

还低 Δ 的情况下基底中颗粒的能带结构. 热激活时, 电子克服势垒 Δ , 而颗粒具有与进入颗粒中的电子相同的电荷. 假设颗粒是直径为 d 的球, 那么 Z 个电子由颗粒逸出将导致颗粒能量降低 $U = Ze^2 / 2C$ (见图 1(b)), 这里 $C = \bar{\epsilon} d / 2$ 为介电常数为 $\bar{\epsilon}$ 的基底中颗粒的电容. 部分热激活电子并不是颗粒在无限远处, 而是形成颗粒的电子“屏蔽”. 电子屏蔽的波函数由颗粒库仑场决定并认为是类氢波函数, 我们只考虑类氢 s 态, 则电子屏蔽波函数为

$$\varphi_n(r) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{Z}{n} \right)^{3/2} F \left(-n + \frac{1}{2}, 2, \frac{2Z\rho}{n} \right) e^{-Z\rho/n},$$

这里 $\rho = me^2 |r| / \hbar^2$, F 为合流超几何函数, 式中已用记号 n 代替 (p, λ) . (6)式中的函数 $\mathcal{K}(p, \lambda, q) = \mathcal{K}(n, q)$ 可由对颗粒和对基底范围积分确定. 对于类氢 s 态, 量子数 n 很大时, 而 $q \rightarrow 0$ 时, 相互作用的基本项等于

$$\mathcal{K}(n, \rho) = \frac{J_0 Z^3}{\pi n^3} + \mathcal{O}(n^{-4}). \quad (8)$$

在(6)式中用积分代替求和并考虑到精确到 $\mathcal{O}(n^{-4})$ 项的(8)式, 以及 $E_{\lambda}^{(p)} = E_n = \epsilon_{n\downarrow} - \epsilon_{n\uparrow} = g\mu_B H + 2\mathcal{K}(n, \rho) S^z_0$, 在 $\hbar\omega > g\mu_B H$ 的条件下, 可以将(6)式的自旋激发阻尼系数改写为

$$\begin{aligned} \hbar\nu(\omega) &= \frac{\pi (\hbar\omega - g\mu_B H)}{2 S^z_0} \\ &\times \sum \left\{ \frac{1}{e^{i(\Delta + f_n)} + 1} - \frac{1}{e^{i(\Delta + f_n + \hbar\omega)} + 1} \right\} \delta(\hbar\omega - E_n) \\ &= \left(\frac{\hbar\omega - g\mu_B H}{2J_0 S^z_0} \right)^{2/3} \\ &\times \frac{\pi^{2/3} J_0 Z (e^{\beta\hbar\omega} - 1)}{\mathfrak{I} e^{-i(\Delta + f)} + 1 \mathfrak{I} e^{i(\Delta + f + \hbar\omega)} + 1}, \end{aligned} \quad (9)$$

这里 $\beta = 1/k_B T$, k_B 为玻尔兹曼常数, T 为绝对温度, $f_n = U - \xi/n^2$ 是从颗粒边界附近的导带底算起, 处于激活态 n 的能量. 其中的 $\xi = mZ^2 e^4 / 2\hbar^2$, 而 f 为

$$f = U - \frac{\xi}{Z^2} \left[\frac{\pi (\hbar\omega - g\mu_B H)}{2J_0 S^z_0} \right]^{2/3}. \quad (10)$$

在计算(5)式时, f_n 和 f 应为正值. 弛豫的最小值由 $\hbar\omega = g\mu_B H$ 或 $f = U$ 决定, 当 $\hbar\omega < g\mu_B H$ 时, 弛豫为 0, 而弛豫的最大值由(9)式取 $f = 0$ 时得到, 结果是

$$\begin{aligned} \hbar\nu_{\max} &= \frac{J_0 U Z^3 (e^{\beta\hbar\omega} - 1)}{3\mathfrak{I} e^{\beta\Delta} + 1 \mathfrak{I} e^{i(\Delta + \hbar\omega)} + 1} \\ &\times \left(\frac{\pi}{2J_0 S^z_0} \right)^{4/3}, \end{aligned} \quad (11)$$

由(11)式看出,热激活情况所决定的自旋弛豫不仅与交换作用常数 J_0 等有关,而且还与温度 $\beta = 1/k_B T$ 、颗粒的费米能与基底导带底间的差 Δ 、激活能 U 等有关.

5. 颗粒系统的自旋弛豫随温度的变化

5.1. 含 $\text{Co}_{86}\text{Nb}_{12}\text{Ta}_2$ 颗粒的 SiO_2 膜的自旋激发弛豫

文献[3,4]的研究表明:含 $\text{Co}_{86}\text{Nb}_{12}\text{Ta}_2$ 颗粒的 SiO_2 膜中,颗粒的费米能与基底导带底间的差 Δ 较大,它的自旋激发弛豫由(8)式决定.由(8)式可以看出,它的自旋激发与温度无关.

5.2. $(\text{a-C:H})_{1-x}\text{CO}_x$ 颗粒膜的自旋激发弛豫

设 Co 颗粒粒径 $d = 2\text{nm}$,则 $\bar{\epsilon} = 1\text{nm}^{-1}$,膜厚 200nm , Co 含量在 $x = 0.24$ 到 $x = 0.46$ 之间变化.由 $C = \bar{\epsilon}d/2$ 可求得颗粒电容 C ,进而求得 $U = Ze^2/2C$.这里的 $\bar{\epsilon}$ 和 Z 分别是 Co 的介电常数和核电荷数.文献[7]给出 $\bar{\epsilon} = 5.5$, $Z = 3$,由此得到 $C = 5.5 \times 10^{-9}\text{F}$ 以及 $U = 0.7 \times 10^{-29}\text{J}$.

局域态密度可这样考虑:一个颗粒体积 $v_0 = 4\pi\left(\frac{d}{2}\right)^3/3$,由 Co 含量在 $x = 0.24$ 到 $x = 0.46$ 范围内,可求出单位体积颗粒数,再利用公式^[8]

$$g = \frac{3}{2} \frac{n}{\epsilon_F} \epsilon_F = \frac{\hbar^2}{2m} (3\pi^2 n)^{2/3}$$

(式中的 n 为单位体积价电子数)

可求得 $g \approx 1\text{eV}^{-1}/\text{nm}^{-3}$.而文献[9]给出 $J_0 = 0.1\text{eV}$, $S^z_0 = 1/2$;当 $H = 0$ 时, $\omega = 20\pi\text{GHz}$.文献[3,4]的实验研究表明,满足 $\Delta^* \ll \hbar T$.这时可用(10)式计算自旋激发弛豫.

取 $\Delta = 0.02\text{eV}$ 作计算,得到的 $\hbar\nu_{\text{max}}$ 随温度的变化规律如图2中的曲线1.由图可以看出 $(\text{a-C:H})_{1-x}\text{CO}_x$ 颗粒膜的自旋激发弛豫随温度变化而变化,而且温度 $T < 400\text{K}$ 时, $\hbar\nu_{\text{max}}$ 随温度升高而增大;

而 $T > 400\text{K}$ 时,随温度升高而减小.但总体来讲随温度变化并不大.如果取 $\Delta = 0.2\text{eV}$,其他值保持不变,则作出的 $\hbar\nu_{\text{max}}$ 随温度 T 的变化曲线见图2中的曲线2,由此看出,随着交换常数 J_0 的增大,自旋激发弛豫将减小,但 $\hbar\nu_{\text{max}}$ 随温度变化的趋势仍相同.

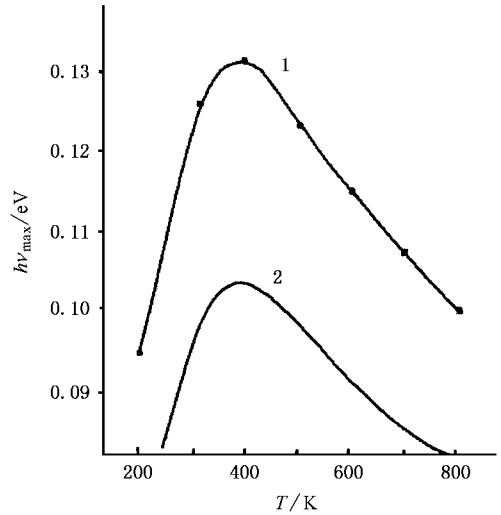


图2 自旋激发弛豫随温度的变化

6. 结 论

1. 含铁磁颗粒的颗粒膜的自旋激发弛豫可应用 $s-d$ 交换作用模型,在对自旋格林函数 $s-d$ 交换相互作用单环近似下求得,结果如(6)式的描述.

2. 基底中局域电子态既可以处于深能级态,也可以是颗粒的热激活的电子屏蔽状态.在第一种情况下,经自旋极化激发(自旋极化弛豫)实现的颗粒自旋弛豫过程与温度无关,可由(7)式描述;在第二种情况下,其自旋激发过程明显依赖于温度,可由(9)式描述,其最大弛豫由(11)式表示.

3. $(\text{a-C:H})_{1-x}\text{CO}_x$ 颗粒膜的自旋激发最大阻尼与温度和交换作用 J_0 有关,当温度 $T < 400\text{K}$ 时,它随温度升高而增大;而 $T > 400\text{K}$ 时,随温度升高而减小.给定温度下它随 J_0 的增大而减小.

[1] Matini S, Takanashi K, Yakushiji K and Fujimory H 1998 *J. Appl. Phys.* **83** 6524

[2] Wang W L, Jiang Z S, Du Y W 1995 *J. Appl. Phys.* **78** 6679

[3] Л. В. Луцев, С. В. Яковлев. 2000, Сб. тр. X VII Межэунар. школьсеминара. " Новые магнитные материалы микроэлектроники ". М. (20-23 июня). С. 524.

- [4] Л. В. Луцев , С. В. Яковлев , Ю. Е. Калинин , А. В. Ситников , О. В. Стогней , В. И. Синлицкий. 2000 , Тез. докл. II Межэунар. конф. “ Аморфные и микрокристаллические полупроводники ”. СПб (3 – 5 июля). С. 77 .
- [5] Niu Q , Wang X D , Kleinman L , Liu W M , Nicholson D M C and Stocks G M 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 207
- [6] Ф. Трев. Введение в теорию псевдодифференциальных операторов и интегральных операторов Фурье. Псевдодифференциальные операторы. Т. 1. Мир , М. (1984). 360с
- [7] Ma Q F 1986 *Practical Manual on Properties of Thermal Physics* (Agricultural Mechanic Press Beijing , China) (97页 in Chinese) 马庆芳 1986 实用热物性手册 (北京 : 中国农业机械出版社) 1986 , 972]
- [8] Gu B L and Wang X K 1989 *Solid-state Physics* (Beijing : Tsinghua University Press) (13页 in Chinese) 顾秉林、王喜坤 1989 固体物理 (北京 : 清华大学出版社) 第 13 页]
- [9] Луцев Л В , Звонарева Т К , Лебелев В М 2001 *Письма в ЖТФ* **27** (15) 84

The spin excitation delay for granular films with ferromagnetic granules *

Wu Qiang¹⁾ Zheng Rui-Lun²⁾

¹⁾ Department of Physics and Electronics Information Engineering , Western Chongqing University , Yongchuan 402168 , China)

²⁾ School of Physics , Southwest China Normal University , Chongqing 400715 , China)

(Received 11 November 2004 ; revised manuscript received 16 December 2004)

Abstract

With the s - d commutative operation model and under the condition of the approximate single-loop of s - d commutative reciprocity for spin Green function , we worked out the spin excitation delay for granular films with ferromagnetic granules , and using the $(\alpha\text{-C:H})_{1-x}\text{Co}_x$ granular film as an example , we explored the rules that spin excitation delay changes with temperature . As a result , the process of the spin excitation delay through spin-polarized excitation is not related to temperature ; however , the process through thermal excitation is temperature-dependent .

Keywords : spin excitation delay , granule film , ferromagnetic granule

PACC : 7530D , 7510J , 7650

* Project supported by the scientific and technological foundation of the Chongqing educational committee , China . (Grant No. 031202) .