

Klasična i kvantna magnetska relaksacija u nanomagnetima

Damir Pajić (dpajic@phy.hr), Krešo Zadro, Nikolina Novosel

Fizički odsjek Prirodoslovno matematičkog fakulteta Sveučilišta u Zagrebu

Uvod:

Nanomagneti su magnetski uređeni komadi materijala nanometarskih veličina. Njihovo stanje dobro je opisano jedinstvenim ukupnim magnetskim momentom m .

Moment fluktuiira preko barijere magnetske anizotropije U . Snižavanjem temperature T frekvencija fluktuacija τ^{-1} postaje sve manja, kako opisuje Arrheniusov zakon aktivacije $1/\tau = 1/\tau_0 e^{-U/kT}$, gdje je $\tau_0 \sim 10^{-9} - 10^{-11}$ s.

Na temperaturama ispod temperature ukočivanja T_B relaksacijsko vrijeme τ magnetizacije sustava nanomagneta postaje dulje od vremena mjerenja jedne točke $\tau_{\text{exp}} \sim 100$ s. Tada se javlja razdvajanje ZFC i FC krivulja magnetizacije. To uzrokuje i superparamagnetsku histerezu.

Snižavanjem temperature relaksacija se ne usporava beskrajno, već nastupa temperaturno neovisno tuneliranje magnetizacije [C1,G1]. Osim ovog kvantnog učinka, kod jednomolekulskih magneta aktualni su i interferencija kvantnih faza [W1] te makroskopska kvantna koherencija [L1].

Zaključci:

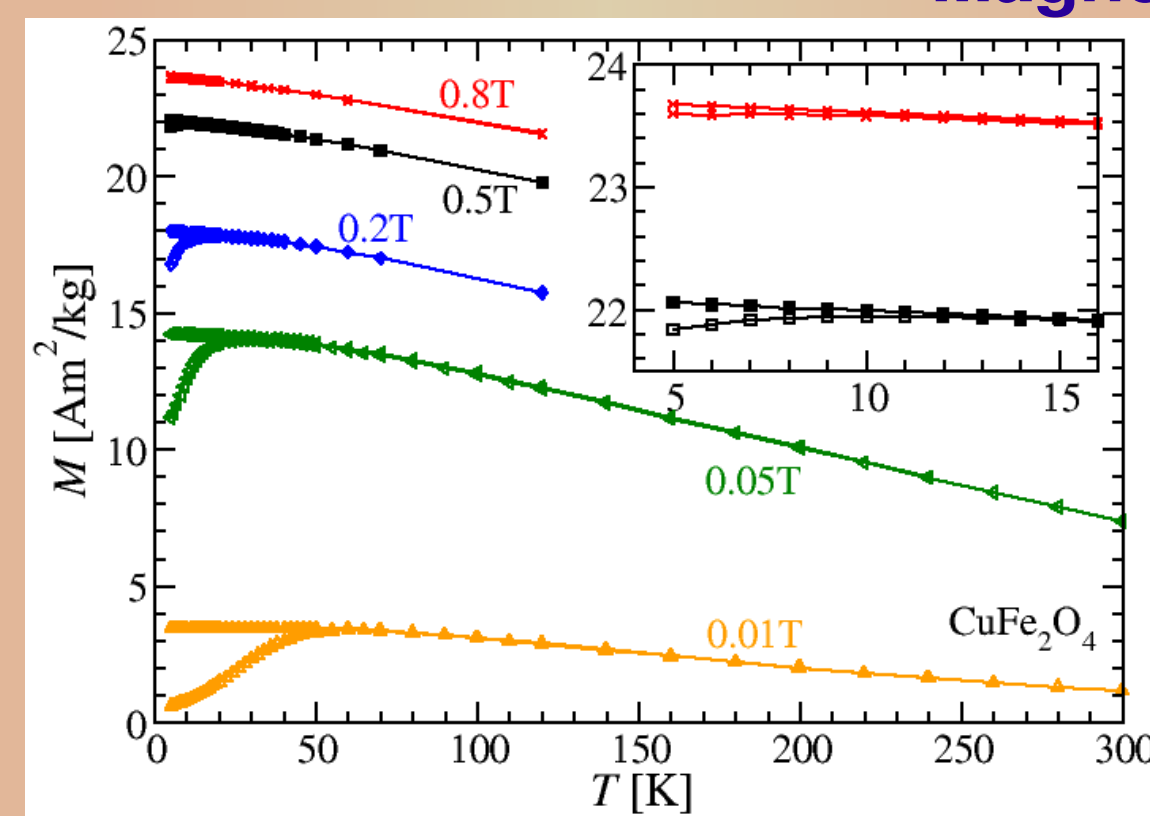
× Magnetske nanočestice $\text{Cu}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ [P1], magnetske nakupine u slitini $\text{Hf}_{57}\text{Fe}_{43}$ [P2] te jednomolekulski magnet Mn_{12} -acetat [P3] ponašaju se superparamagnetski. Toplinskim pobuđivanjem magnetskih momenata preko barijere anizotropije objašnjavaju se ZFC i FC krivulje, temperaturno ovisne magnetske histereze te relaksacija magnetizacije.

× Nanočestice pokazuju vrlo složeno uređenje, kakvo se ne uočava kod nakupina u slitini.

× Mn_{12} -acetat je najzanimljiviji za istraživanje kvantnog tuneliranja magnetizacije koje je neposredno vidljivo na histerezama, relaksaciji i ZFC krivuljama. Kod nanočestica i magnetskih nakupina kvantne pojave nisu tako očite, a tuneliranje magnetizacije bilo bi zbog malene anizotropije vidljivo preko temperaturno neovisne magnetske viskoznosti tek pri temperaturama reda ~ 0.1 K.

Magnetske nanočestice

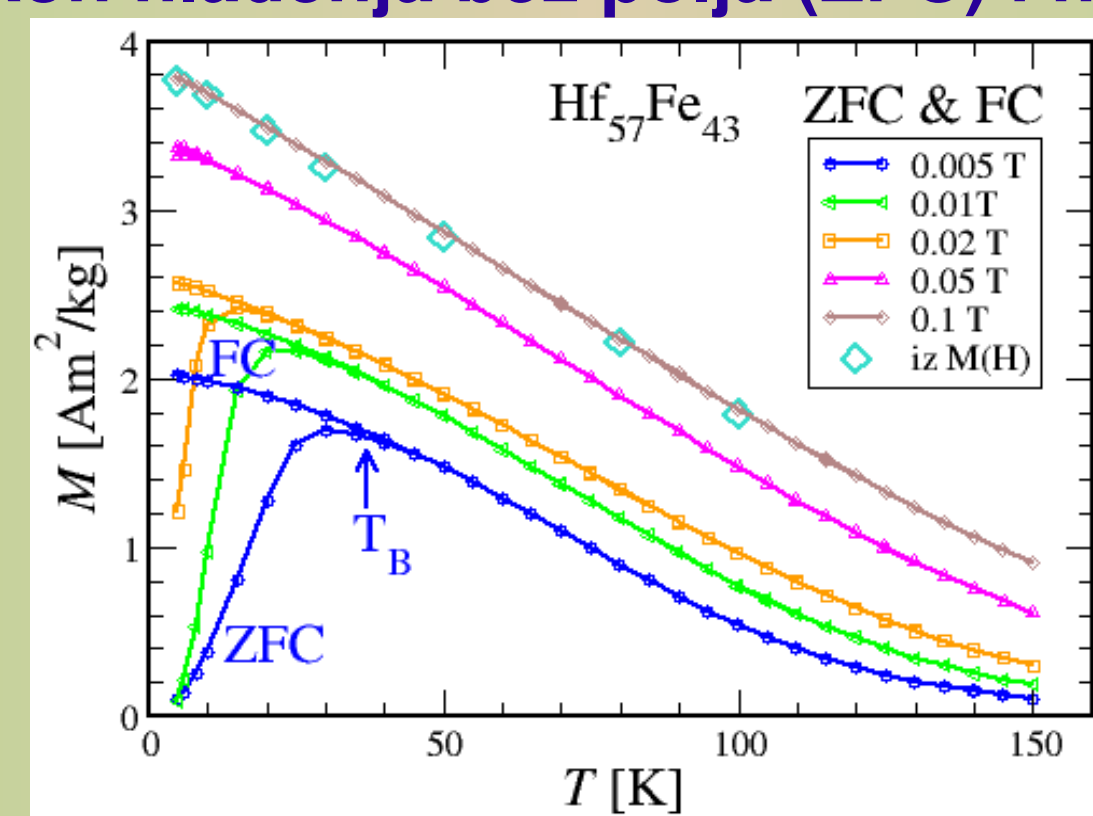
- × nanočestice $\text{Cu}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ (6.5 ± 1.5) nm
- × ferimagnetski spinel
- × $d \ll 100$ nm \Rightarrow jednodomske [K1]



Tri vrste nanomagneta

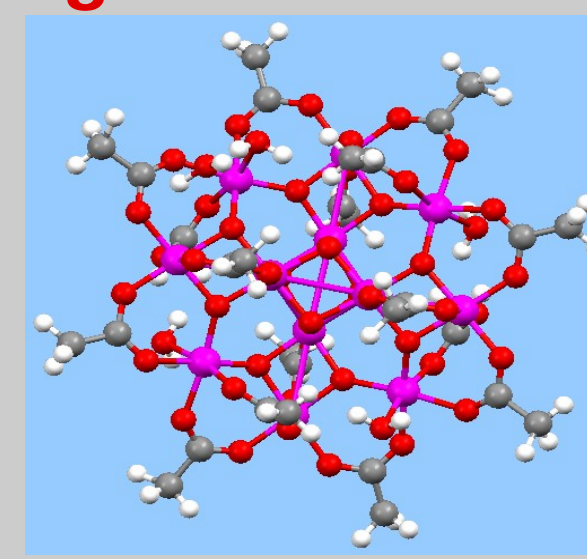
Magnetske nakupine u nemagnetskoj matrici

- × amorfná slitina $\text{Hf}_{57}\text{Fe}_{43}$: magnetske nakupine (ne strukturno-kemijske) u nemagnetskoj matrici.
- × 43 at% je ispod granice dugodosežnog uređenja te iznad granice paramagnetskog ponašanja
- × očekuju se nakupine relativno velikog magnetskog momenta kao i kod nanočestica

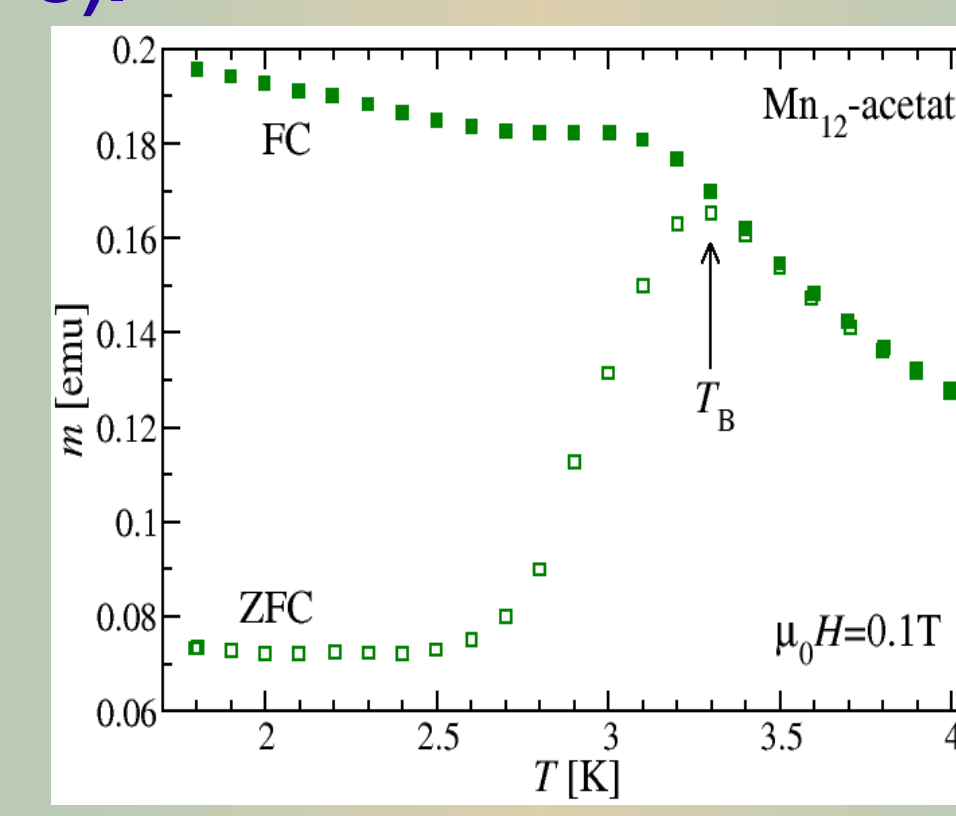
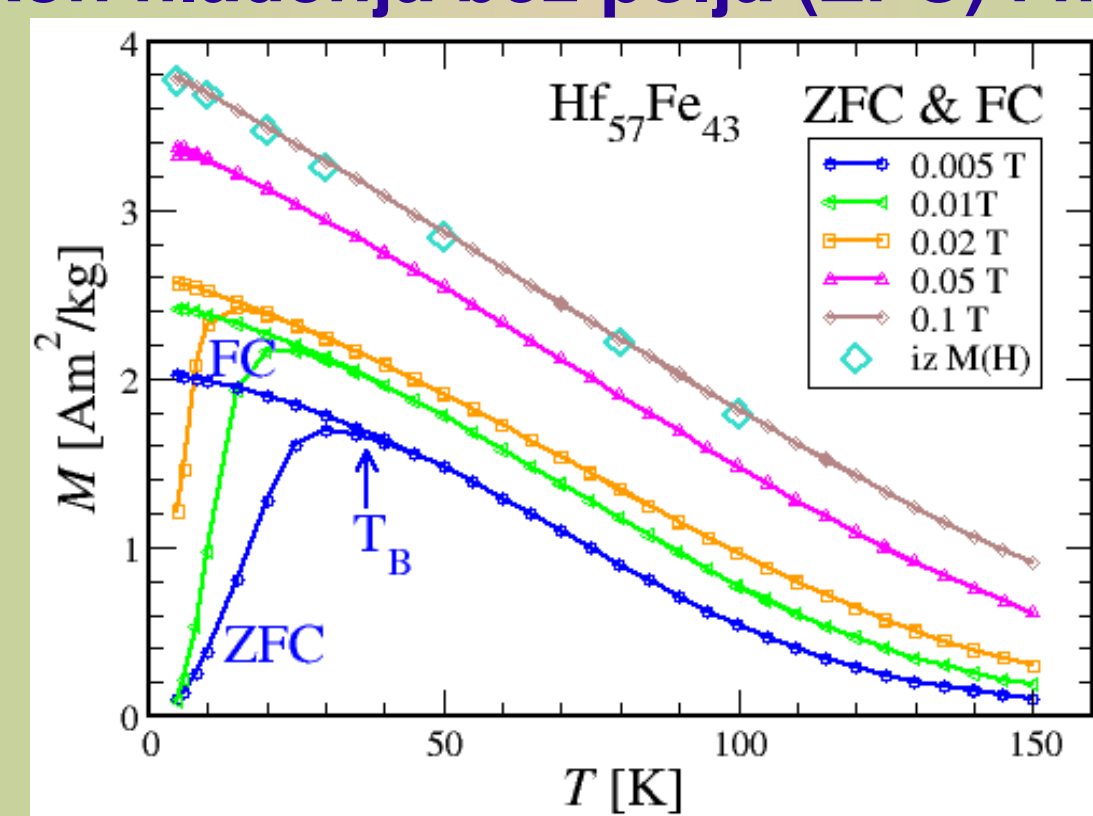
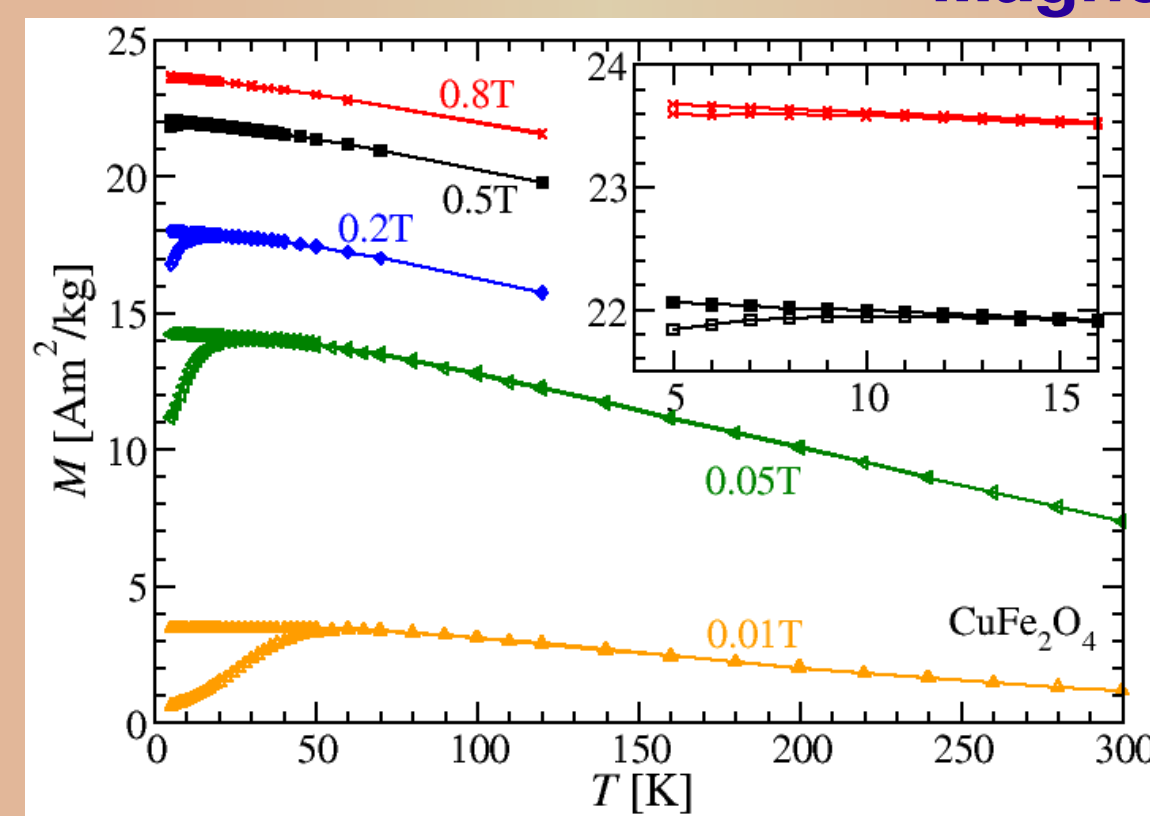


Jednomolekulski magneti

- × kompleksna molekula Mn_{12} -acetat
- × 12 manganovih iona vezani u $S=10$ stabilan pri niskim T
- × molekule u kristalu magnetski izolirane jedne od drugih [L2,G2]

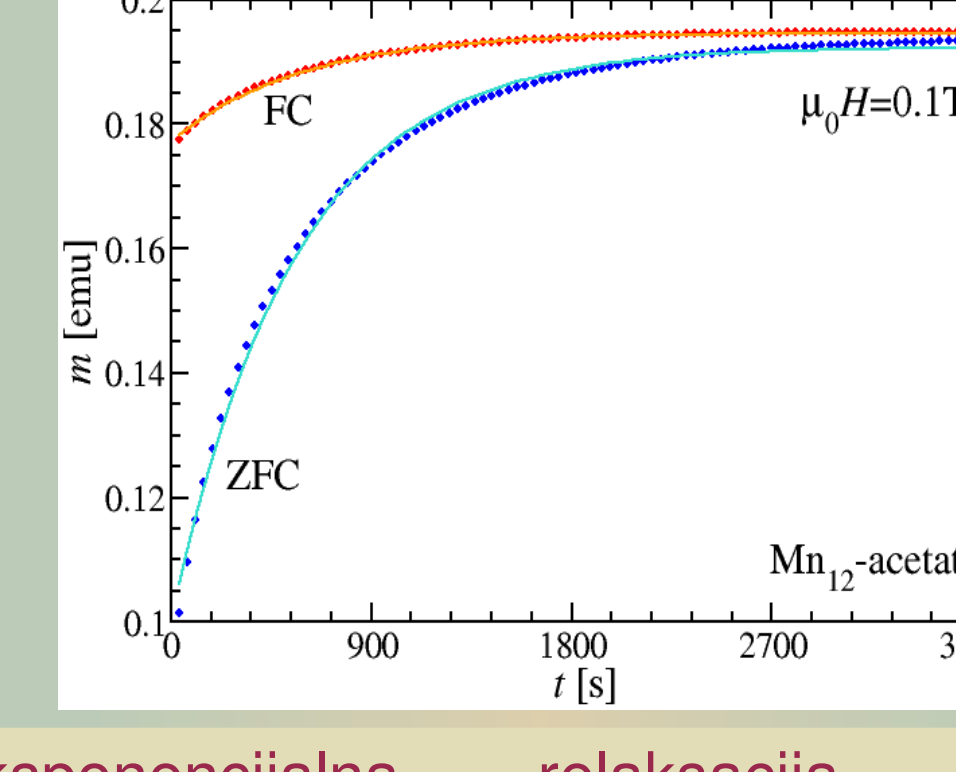
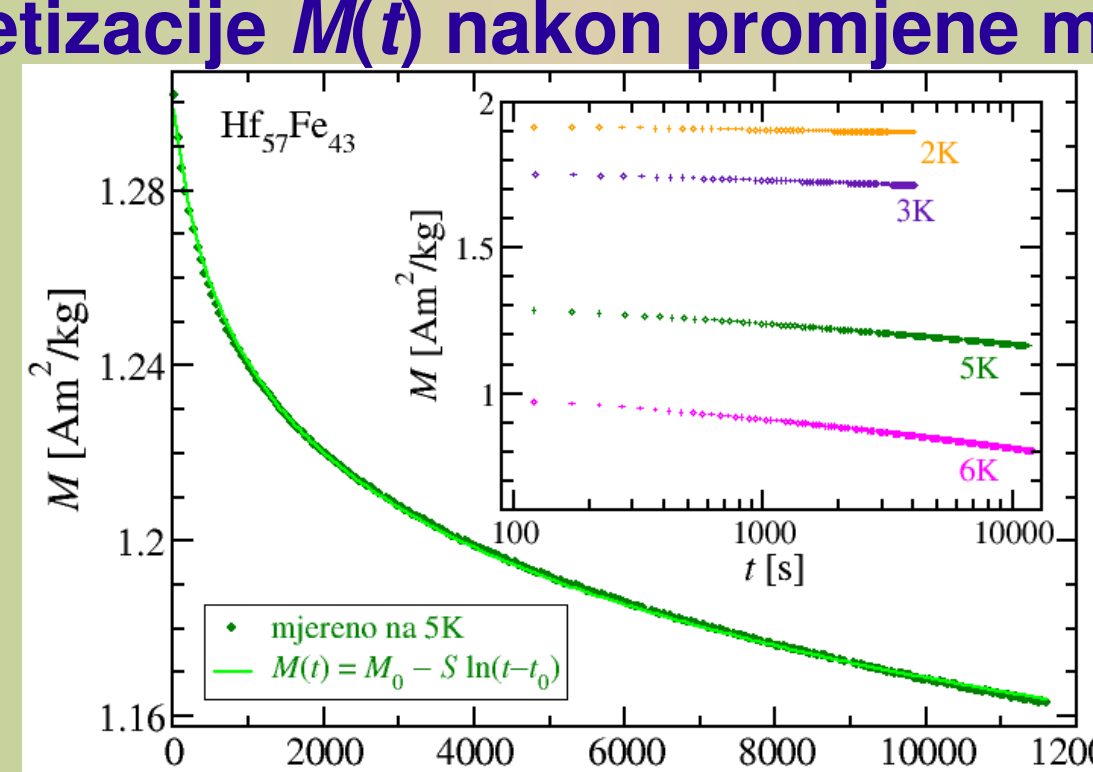
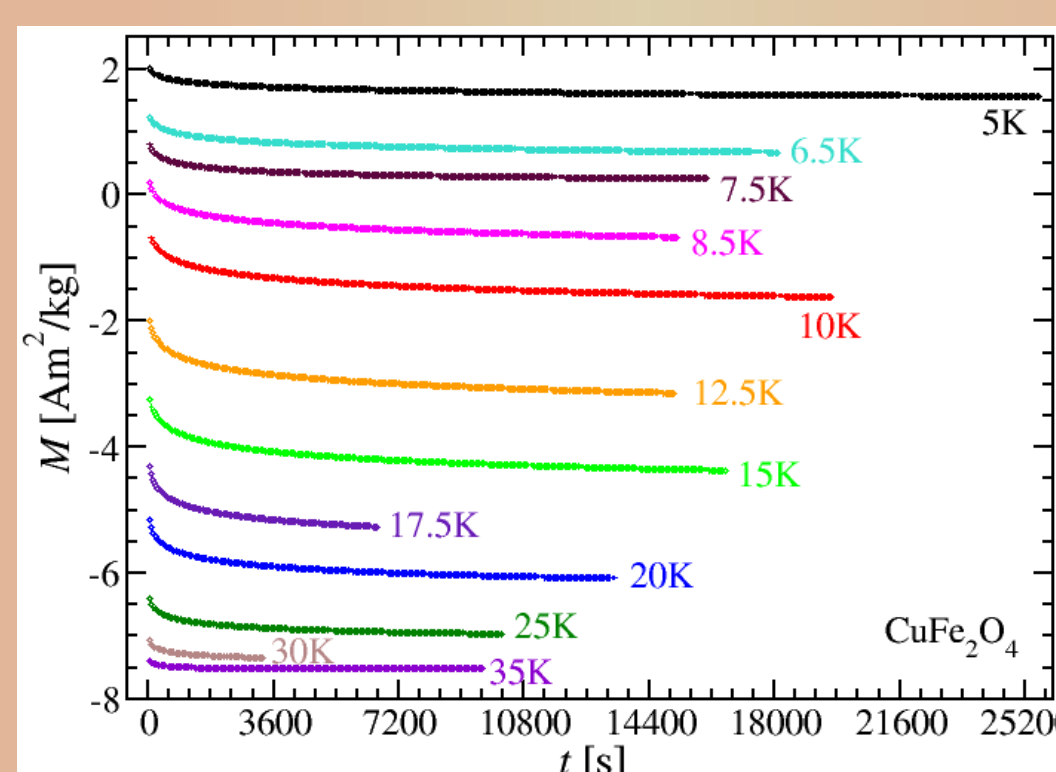


Magnetizacija $M(T)$ nakon hlađenja bez polja (ZFC) i hlađenja u polju (FC).



ZFC i FC krivulje razdvajaju se ispod temperature ukočivanja T_B .

Relaksacija magnetizacije $M(t)$ nakon promjene magnetskog polja



Logaritamska relaksacija $M(t) = M_0 - S \ln(t - t_0)$ posljedica je toplinske aktivacije sustava momenata široke raspodjele barijera [C2,P1,P2].

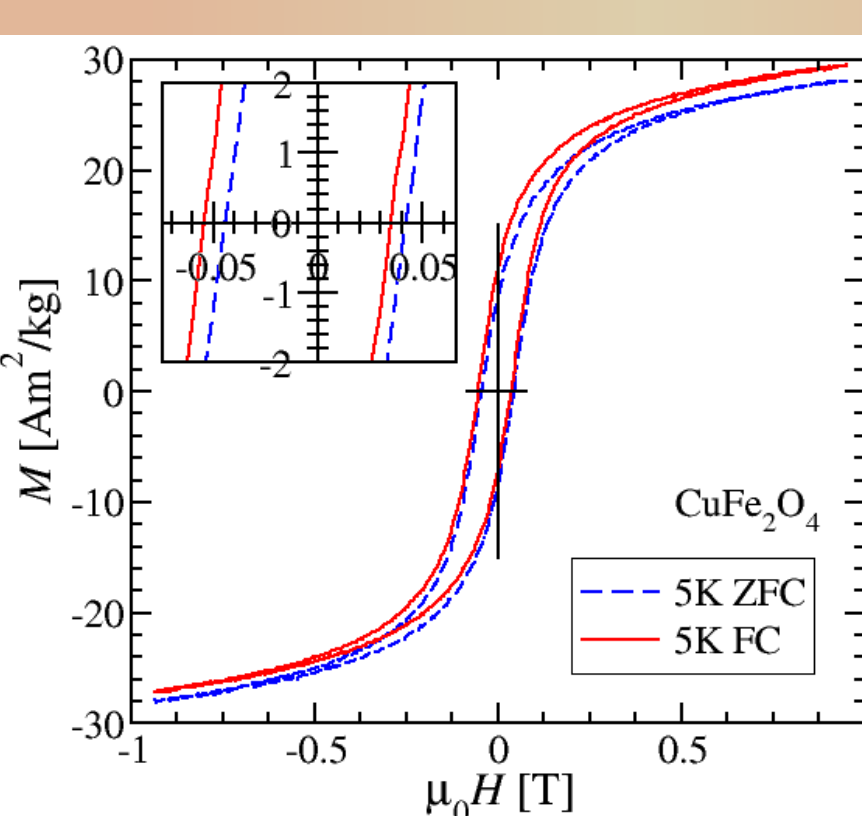
Eksponencijalna relaksacija [P3] posljedica je toplinske aktivacije [R3] sustava identičnih jedinki.

Zaključci:

× Magnetske nanočestice $\text{Cu}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ [P1], magnetske nakupine u slitini $\text{Hf}_{57}\text{Fe}_{43}$ [P2] te jednomolekulski magnet Mn_{12} -acetat [P3] ponašaju se superparamagnetski. Toplinskim pobuđivanjem magnetskih momenata preko barijere anizotropije objašnjavaju se ZFC i FC krivulje, temperaturno ovisne magnetske histereze te relaksacija magnetizacije.

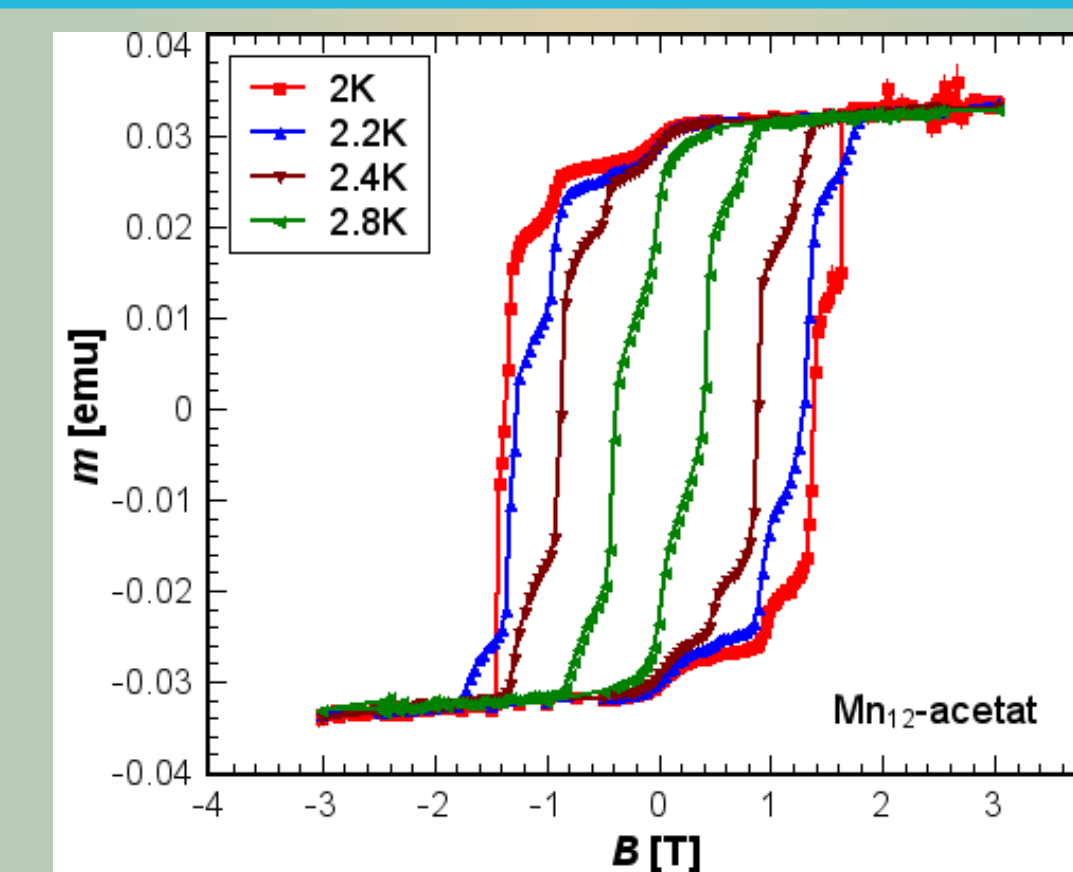
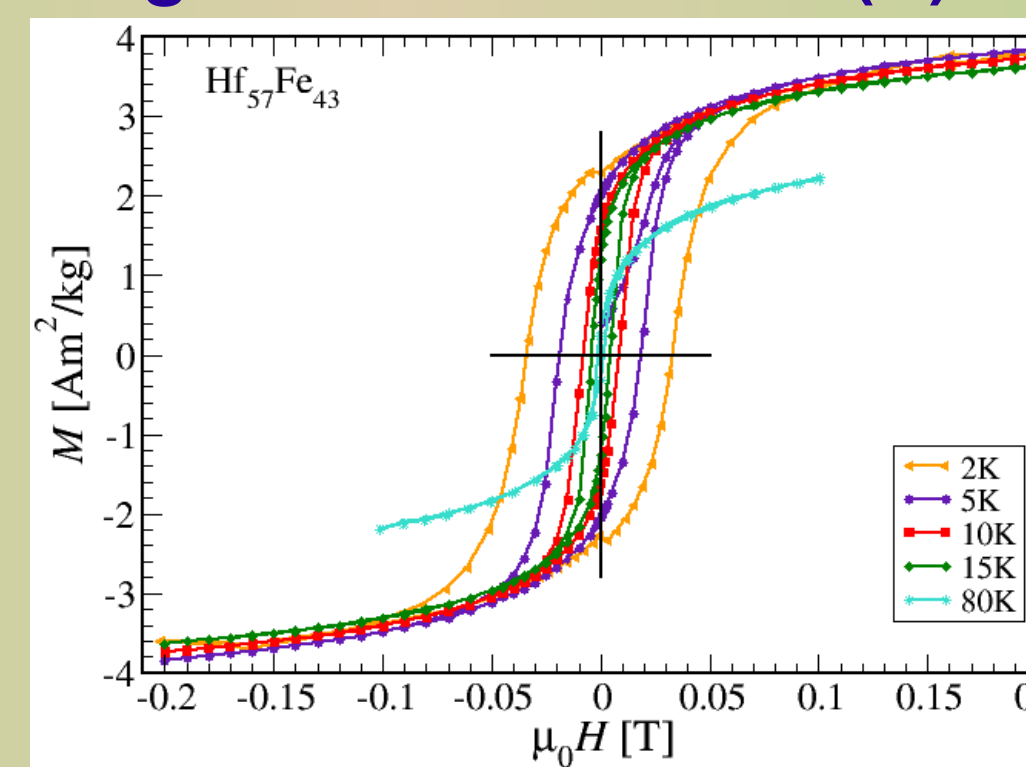
× Nanočestice pokazuju vrlo složeno uređenje, kakvo se ne uočava kod nakupina u slitini.

× Mn_{12} -acetat je najzanimljiviji za istraživanje kvantnog tuneliranja magnetizacije koje je neposredno vidljivo na histerezama, relaksaciji i ZFC krivuljama. Kod nanočestica i magnetskih nakupina kvantne pojave nisu tako očite, a tuneliranje magnetizacije bilo bi zbog malene anizotropije vidljivo preko temperaturno neovisne magnetske viskoznosti tek pri temperaturama reda ~ 0.1 K.



Ponašanje koercitivnosti i remanentnosti u skladu je sa svojstvima nano-materijala, to jest nasumično okrenutih jednodomskih čestica/nakupina široke raspodjele po veličini [R1].

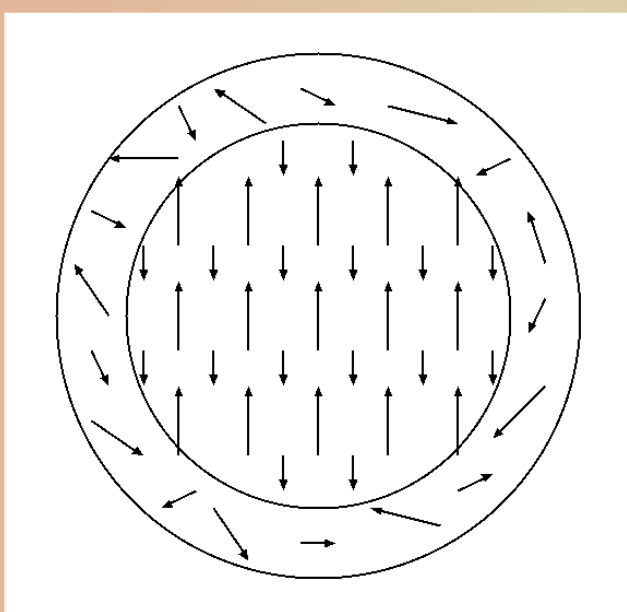
Superparamagnetska histereza $M(H)$



Petlje magnetske histereze povećanjem temperature postaju sve uže jer je zbog veće toplinske energije potrebno manje magnetsko polje za preokretanje momenata preko barijere anizotropije [S1]. Detaljniji model u obzir uzima i dinamiku [M1].

"Exchange bias"

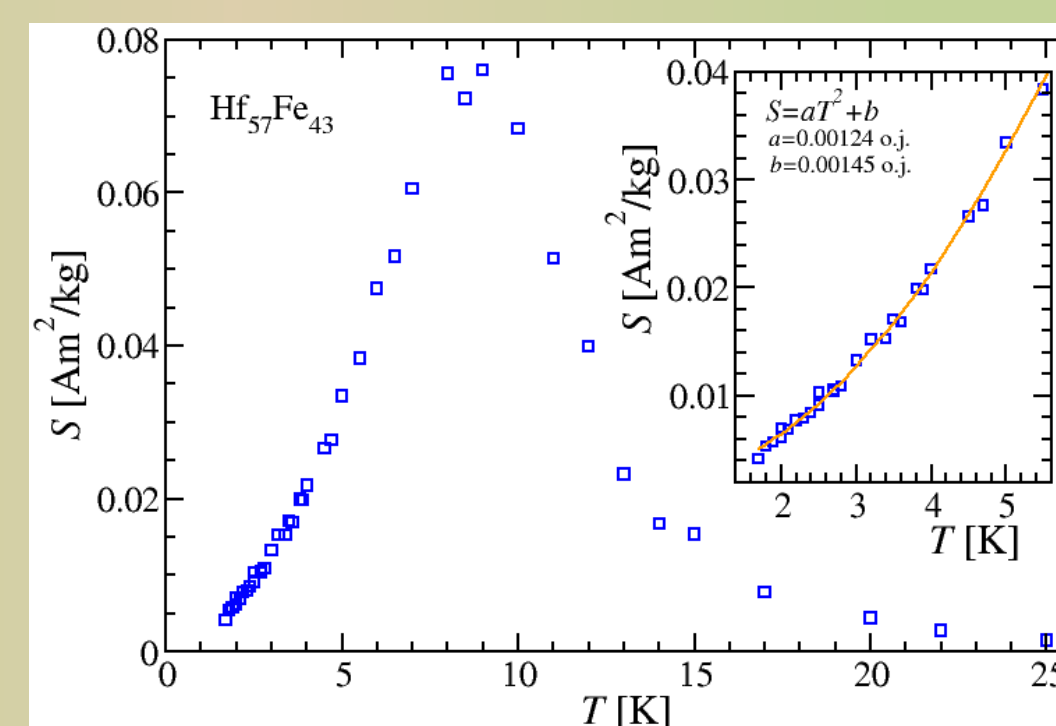
Pomaknute histereze upućuju na međudjelovanje izmjene [N1] između ferimagnetski uređene unutrašnjosti i drugačije (ne)uređenog površinskog sloja, to jest na jezgra-omotač strukturu nanočestice.



Toplinska relaksacija magnetizacije

Magnetska viskoznost S raste jer povećanjem T sve više nakupina ima sve veću toplinsku energiju za preskakanje sve viših barijera. Smanjenje S pri višim T znači da je sve više nakupina relaksiralo prije početka mjerenja.

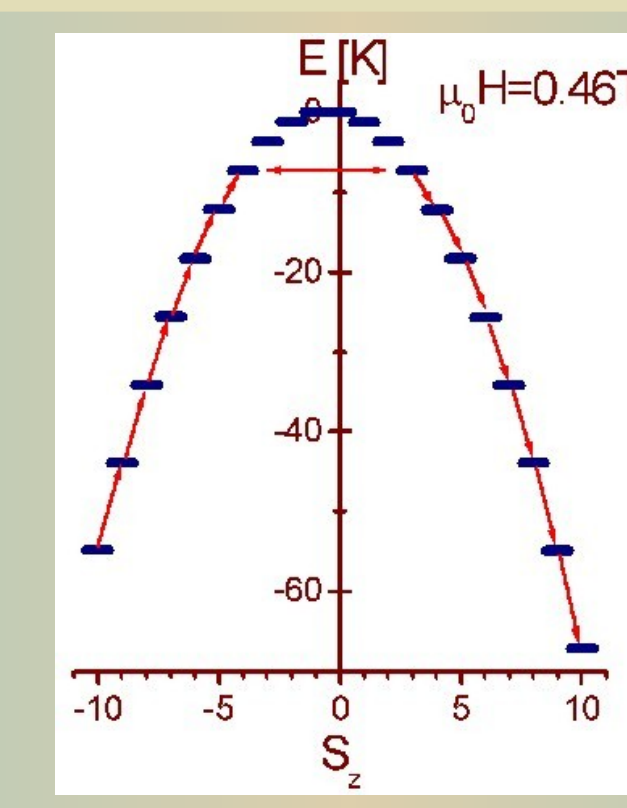
Za niske T model toplinske relaksacije ansambla magnetskih nanočestica [C2] daje $S \sim T^2$. Nezanemariv konstantan član mogao bi upućivati na tuneliranje magnetizacije [P2].



$M(H)$ i $S(T) \Rightarrow \mu = 600 - 3000 \mu_B$.
 U (najveća $U \approx 2 \cdot 10^{-20}$ J uz $\mu_0 H = 0.001$ T) i gustoća anizotropije ($K \approx 3 \cdot 10^4$ J/m³) te $S(T) \Rightarrow$ volumen nakupina odgovarao bi veličini $d = 3.5 - 6$ nm [P2].
 I kod nanočestica su slični momenti i barijere.

Tuneliranje magnetizacije

Skokovi na histerezi uzrokovani su kvantnim tuneliranjem spina pri rezonantnom polju između stanja s različitim strana barijere [F1]. Rezonantna svojstva vide se i u $T_B(H)$ [P3], $\tau(H)$ [R2].



Reference

- [...] ...
- [C1] E. M. Chudnovsky, L. Gunther, Phys. Rev. Lett. **60** (1988) 661
- [C2] E. M. Chudnovsky, J. Tejada, Macroscopic Quantum Tunneling of the Magnetic Moment, Cambridge University Press, U.K., 1998.
- [F1] J. R. Friedmann, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76** (1996) 3830
- [G1] L. Gunther, B. Barbara, Ur., Quantum Tunneling of Magnetisation - QTM'94, Kluwer, Dordrecht, Netherlands, 1995.
- [G2] D. Gatteschi, R. Sessoli, J. Villain, Molecular Nanomagnets, Oxford University Press, UK, 2006.
- [K1] C. Kittel, Rev. Mod. Phys. **21** (1949) 541
- [L1] F. Luis, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85** (2000) 4377
- [L2] T. Lis, Acta. Cryst. B **36** (1980) 2042
- [M1] T. Mileković, Diplomski rad, FO @ PMF, Zagreb, 2006.
- [N1] J. Nogués, *et al.*, Phys. Rep. **422** (2005) 65
- [P1] D. Pajić, K. Zadro, R. E. Vandenberghe, I. Nedkov, J. Magn. Magn. Mater., **281** (2004) 353
- [P2] D. Pajić, K. Zadro, R. Ristić, I. Živković, Ž. Skoko, E. Babić, J. Phys.: Condens. Matter **19** (2007) 296207
- [P3] D. Pajić, K. Zadro, T. Friščić, N. Judaš, E. Meštrović, FIZIKA A **8** (1999) 253
- [R1] R. Ribas *et al.* J. Phys.: Condens. Matter **7** (1995) 3301
- [R2] M. Reissner, J. Beiter, D. Pajic, K. Zadro, G. Hilscher, W. Steiner, AIP Conf. Proc. **850** (2006) 1135
- [R3] B. Rakvin, D. Žilić, N. S. Dalal, Sol. Stat. Commun. **136** (2005) 518–522
- [S1] E. C. Stoner, E. P. Wohlfarth, Phil. Trans. Roy. Soc. London **A240** (1948) 599
- [W1] W. Wernsdorfer, R. Sessoli, Science **284** (1999) 133
- [...] ...