Письма в ЖЭТФ, том 57, вып.9, стр.548 - 552 ©1993 г. 10 мая

МАКРОСКОПИЧЕСКАЯ КВАНТОВАЯ СПИН-ПЕРЕОРИЕНТАЦИЯ В ИЗИНГОВСКИХ НАНОЧАСТИЦАХ

А.К.Звездин, А.Ф.Попков

Институт общей физики РАН

117942 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 марта 1993 г.

Проанализировано явление макроскопического квантового туннелирования (МКТ) намагниченности в малых частицах сильно анизотропного магнетика. Рассмотрены некрамерсовские ионы, имеющие изинговский характер намагничивания при низких температурах. Показано, что динамическое взаимодействие намагниченности с квадрупольным моментом иона осуществляет непрерывную переориентацию M на $-M$ и приводит к отличной от нуля вероятности МКТ.

1. В последнее время теоретически и экспериментально активно изучается проблема макроскопического квантового туннелирования намагниченности в малых ферромагнитных частицах [1-5]. Их изучение представляет, в частности, интерес в контексте новых идей, связанных с фейнмановскими компьютерами и квантовыми электронными сетями [6]. Исходным пунктом теоретических работ, выполненных в данном направлении, является предположение о сохранении модуля вектора намагниченности $|\mathrm{M}| = \mathrm{const}$ во время движения. Это сильное условие может быть оправдано для "слабо анизотропных" магнитных материалов, в которых "релятивистские" эффекты малы по сравнению с обменным взаимодействием. В то же время существует много магнитных материалов (редкоземельные, актинидные, соединения с Co^{2+} и др.), у которых это условие не выполнено. Заметим, что многие магнитные объекты, в которых экспериментально изучалось явление магнитного макроскопического квантового туннелирования [7-9], относятся к разряду сильно анизотропных магнетиков. Более того, с практической точки зрения, в частности с точки зрения предельных характеристик магнитной записи, именно сильно анизотропные ферромагнитные материалы представляются наиболее актуальными.

В настоящем сообщении мы рассмотрим проблему квантового туннелирования намагниченности в предельном – изинговском случае, когда намагниченность системы может принимать значения, определенные на некоторой прямой (оси) в трехмерном пространстве. Более конкретно, мы рассмотрим магнитный материал, магнитные ионы которого являются некрамерсовскими и имеют в основном состоянии два синглетных уровня, отделенных от возбужденных уровней достаточно широким энергетическим интервалом. Известно, что такие ионы с хорошей точностью являются изинговскими (см., например, [10]). Согласно существующей теории, для МКТ необходимо наличие непрерывной траектории для переориентации намагниченности [1-4]. В изинговском случае, на первый взгляд, подобная траектория отсутствует. Мы покажем, что благодаря взаимодействию намагниченности с квадрупольным моментом иона такая траектория существует и в изинговском случае.

2. Представим исходный гамильтониан системы в виде

$$\hat{H} = \hat{H}_{CF} - \frac{1}{2}\sum_{i\neq j} I_{ij}\mathrm{S}_i\mathrm{S}_j, \qquad (1)$$

где $\hat{H}_{CF}$ – гамильтониан кристаллического поля, второе слагаемое представляет обменное взаимодействие ионов друг с другом, S_i – операторы спина i-го иона. Пусть основным состоянием иона в кристаллическом поле являются два близко расположенных синглета с действительными волновыми функциями $|A>$ и $|B>$, разделенные энергетическим интервалом Δ, причем $\Delta \ll E_i$, где E_i – расстояние до возбужденных уровней. Проецируя исходный гамильтониан на состояния $|1>=(|A>+i|B>)/\sqrt{2}$ и $|2>=(|A>-i|B>)/\sqrt{2}$, получим эффективный гамильтониан рассматриваемой системы в виде [10]

$$\hat{H}_{eff} = -\frac{1}{2}\Delta\sum_i \hat{\sigma}_{ix} - \frac{1}{2}\sum_{i\neq j}\lambda_{ij}\hat{\sigma}_{iz}\hat{\sigma}_{jz}, \quad (2)$$

где $\hat{\sigma}_x$, $\hat{\sigma}_z$ – матрицы Паули, $\lambda_{ij} = I_{ij}[m(g_J-1)/g_J\mu_B]^2$ g_J – фактор Ланде, μ_B – магнетон Бора, $m = g_J\mu_B < 1|J|1 >$, $\hat{J}$ – оператор полного момента иона. Подчеркнем, что магнитный момент иона при этом равен $M = (0, 0, M)$, где $M = m < \hat{\sigma}_z >$, а величины $< \hat{\sigma}_x >$ и $< \hat{\sigma}_y >$ определяются компонентами квадрупольного момента иона.

3. Предположим теперь, что процесс макроскопической квантовой переориентации спинов является когерентным, когда спины атомов параллельны друг другу. Тогда динамическое поведение двухуровневой системы (2) будет описываться квантовомеханическими уравнениями движения для эффективного спина:

$$i\hbar d_t S_{eff} = [S_{eff}, \hat{H}], \quad (3)$$

где $S_{eff} = (1/2)\vec{\sigma}$, $\hbar$ – постоянная Планка. Усредняя уравнение (3) по когерентному квантовому состоянию

$$|\tau> = \frac{\sqrt{1+n_z}}{2}|\frac{1}{2}> + \frac{\sqrt{1-n_z}}{2}e^{-i\varphi}|-\frac{1}{2}>,$$

где $n = (\sqrt{1-n_z^2}\cos\varphi,\ \sqrt{1-n_z^2}\sin\varphi,\ n_z)$ – единичный вектор, определяющий ориентацию S_{eff} в пространстве, получим

$$d_t n = -\gamma\left[n \times \frac{\delta E}{\delta n}\right], \quad (4)$$

где $\gamma = 2/\hbar$, $E = < \hat{H} > = -\frac{1}{2}N\Delta n_x - N\lambda n_z^2$ – энергия системы при $T = 0$, N – полное число ионов в частице. В переменных n_z, φ уравнения (4) имеют вид

$$d_t\varphi - = -2\gamma\lambda n_z + \frac{\Delta\gamma n_z}{2\sqrt{1-n_z^2}}\cos\varphi, \quad (5а)$$

$$-d_t n_z = \Delta\gamma\sqrt{1-n_z^2}\sin\varphi. \quad (5б)$$

Уравнениям (5) соответствует лагранжиан

$$L = \frac{1}{\gamma}N\dot{\varphi}n_z + N\lambda n_z^2 + \frac{1}{2}N\Delta\sqrt{1-n_z^2}\cos\varphi. \quad (6)$$

Система (5) имеет первый интеграл $d_t H = 0$, где

$$H = -N\lambda\left[n_z^2 + \frac{\Delta}{2\lambda}\sqrt{1-n_z^2}\cos\varphi\right] = \text{const}. \quad (7)$$

4. Положениям устойчивого равновесия системы, описываемой лагранжианом (4), соответствуют точки $\varphi = 0$, $n_z = \pm\sigma_0 = \sqrt{1-(\Delta/4\lambda)^2}$, между которыми происходит туннелирование. Вероятность туннелирования между состояниями равновесия в квазиклассическом приближении определяется выражением [11] $P \sim \omega \exp(-B)$, в котором ω – частота осцилляций вблизи положения равновесия, $B = 2S_E/\hbar$ – постоянная Гамова, $S_E = i\int L dt$ – действие, вычисленное на траектории туннелирования.

Частота осцилляций вблизи положений равновесия $n_z \sim \sigma_0$ находится обычным путем из рассмотрения линеаризованных уравнений системы (5), описываемой лагранжианом (6). Она равна $\omega = 2\gamma\lambda\sigma_0$. Для нахождения траектории туннелирования и соответствующего ей вклада в действие нужно перейти в интеграле движения (7) к мнимому времени $\tau = it$. Принимая во внимание значение интеграла (7) в точках равновесия системы $n_z = \pm\sigma_0$, из (5б) и (7) после алгебраических преобразований получим уравнение

$$d_\tau n_z = \lambda\gamma(\sigma_0^2 - n_z^2), \tag{8}$$

интегрирование которого с начальными условиями $n_z(\tau = \pm\infty) = \pm\sigma_0$ приводит к инстантонному решению $n_z = \sigma_0 \mathrm{th}(\lambda\gamma\tau)$. Изменение угла φ при этом задается интегралом движения (7). Используя замену переменной интегрирования в выражении для действия согласно соотношению $d\tau = dn_z/d_\tau n_z$, после соответствующих подстановок и несложных преобразований получим, что искомая постоянная равна

$$B = N\int\limits_{-\sigma_0}^{+\sigma_0} 2n_z^2\left[1 - \frac{\sqrt{4(1-\sigma_0^2)(1-n_z^2)+(\sigma_0^2-n_z^2)}}{2(1-n_z^2)}\right]dn_z = N\left(\ln\frac{1+\sigma_0}{1-\sigma_0} - 2\sigma_0\right). \tag{9}$$

Видно, что $B \simeq \frac{2N}{3}\sigma_0^3$ при $\sigma_0 \to 0$, а также $B \to \infty$ при $\sigma_0 \to 1$.

Частота туннелирования будет равна $\delta\omega \sim (\omega/\pi)\exp(-B)$. Она определяется числом частиц в кластере N и величиной спина σ_0. При большой величине обменного взаимодействия $\lambda \gg \Delta$, когда величина спина приближается к $\sigma_0 = 1$, вероятность туннелирования стремится к нулю. По мере увеличения отношения Δ/λ и уменьшения спина ($\sigma_0 \to 0$) частота туннелирования приближается к собственной частоте осциллятора, так как величина барьера $U_0 = E(n_z = 0) - E(n_z = \sigma_0) = 2N\lambda[1 - \sigma_0^2/2 - \sqrt{1-\sigma_0^2}]$ уменьшается до нуля.

Процессы квантового туннелирования доминируют при низких температурах $T \ll T^*$, когда термически активированные процессы, скорость которых изменяется с температурой как $\exp(-U_0/kT)$, подавлены. Характерная температура T^* (кроссовер – температура), при которой сравниваются вероятности квантового туннелирования и термически активированных процессов спонтанного перемагничивания, определяется условием $B = U_0/kT^*$, откуда

$$T^* = [2N\lambda/kB(\sigma_0)][1 - \sigma_0/2 - \sqrt{1-\sigma_0^2}].$$

Из последней формулы следует, что $T^* \to 0$ при $\sigma_0 \to 0$, а также когда $\sigma_0 \to 1$.

5. Таким образом, если в слабоанизотропном случае возможность непрерывной переориентации намагниченности в пространстве с сохраняющейся длиной вектора M обеспечивает конечную величину энергетического барьера между состояниями $|M>$ и $|-M>$ и отличную от нуля вероятность туннельного

перехода, то в изинговском случае формально из-за отсутствия непрерывной траектории перехода соответствующая вероятность равна нулю. Мы показали, что взаимодействие с квадрупольным моментом и возбуждение квадрупольной моды при переходе[1)] открывают траекторию перехода с непрерывной переориентацией в пространстве квадрупольного момента и непрерывным одномерным переходом намагниченности $M \to -M$. На этой траектории соответствующая вероятность туннелирования отлична от нуля.

Хорошими модельными объектами для экспериментального исследования МКТ в изинговских магнетиках являются некоторые редкоземельные гидроокисиды $R(OH)_3$ и редкоземельные литиевые фториды $LiRF_4$. В таблице приведены характерные ожидаемые параметры рассмотренного явления для некоторых из указанных материалов. Другим интересным объектом является синглетный магнетик Pr (или Pr с малой примесью ионов Nd). Многочисленные исследования показали, что в этом материале отношение обменной константы к характерному параметру кристаллического поля $\Delta/4\lambda$ очень близко к пороговому значению, необходимому для индуцирования метамагнитного перехода $\Delta/4\lambda = 1$, и может быть легко изменено в ту или иную сторону, например слабым легированием или технологической обработкой. В этом случае константа Гамова может быть существенно снижена за счет фактора $\sigma_0^3 \sim (1-(\Delta/4\lambda)^2)^{3/2}$.

Феррит	T_c, K	Δ, см$^{-1}$	$\Delta/4\lambda$	$\omega/2\pi$,Гц	$-\frac{d}{dN}\lg\frac{\delta\omega}{\omega}$	T^*,K
$LiTbF_4$	2,87	1,0	0,25	$1,2\cdot10^{11}$	0,33	0,49
$Tb(OH)_3$	3,7	0,3	0,059	$1,5\cdot10^{11}$	0,95	0,81

$\delta\omega$ – частота МКТ, ω – частота собственных колебаний в основном состоянии.

Отметим, что в изинговских магнетиках весьма необычным может быть влияние магнитного поля на макроскопическое квантовое туннелирование намагниченности, особенно в связи с возможностью возникновения кроссовера, то есть пересечения уровней основного состояния иона в некотором поле и сопутствующих магнитных фазовых переходов [10].

Рассмотренная теоретическая модель может быть использована также при анализе макроскопических туннельных эффектов в некоторых сегнетоэлектрических кристаллах при структурных превращениях.

Авторы благодарны Российскому фонду фундаментальных исследований за поддержку работы.

1. E.M.Chudnovsky and L.Gunter, Phys. Rev. Lett., **60**, 661 (1988).
2. M.Uehara and B.Barbara, J. Physique **47**, 233 (1986).
3. M.Enz and R.Schilling, J. Phys. C: Sol. St. Phys. **19**, L711 (1986).
4. B.Barbara and E.M.Chudnovsky, Phys. Lett. **145A**, 205 (1990).
5. D.D.Owshalom, M.A.McCord and G.Grinstein, Phys. Rev. Lett. **65**, 783 (1990).
6. T.D.Clark, Physica B **169**, 400 (1991).
7. L.Gunter, In the Magnetic Properties of fine Particles, N.H., 213 (1992).
8. J.Tejada, X.X.Zhang, Ll.Balcells et al. ibid, 225.
9. B.Barbara, C.Paulsen, L.C.Sampaio et al., ibid, 235.

[1)] В связи с этим обстоятельством отметим работу Островского [12], в которой изучались доменные границы в изинговских магнетиках. Квадрупольный момент редкоземельных ионов реально наблюдался при исследовании линейного двулучепреломления гранатов [13].

10. А.К.Звездин, В.М.Матвеев, А.А.Мухин, А.И.Попов, Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах, М.: Наука, 1985. А.К.Звездин, В.М.Матвеев, А.И.Попов, Письма в ЖЭТФ **23**, 267 (1976); ЖЭТФ **72**, 1097 (1977).

11. A.J.Legett, S.Chakravarty, A.T.Dorsey et al., Rev. Mod. Phys. **59**, 1 (1987).

12. В.С.Островский, Письма в ЖЭТФ **42**, 143 (1985).

13. Н.Ф.Ведерников, А.К.Звездин, Р.З.Левитин, А.И.Попов, ЖЭТФ **93**, 2161 (1987).