

# Квантовый аналог спин-флоп перехода для спиновой пары

Б. А. Иванов, В. Е. Киреев<sup>1)</sup>

Институт магнетизма НАН и МОН Украины, 03142 Киев, Украина

Поступила в редакцию 6 декабря 2004 г.

Исследованы квантовые (ступенчатые) кривые намагничивания спиновой пары с антиферромагнитным взаимодействием под действием магнитного поля, параллельного легкой оси магнитной анизотропии. Анализ проведен как на основе квазиклассического приближения, так и численно, для широкого интервала значений параметров анизотропии и значений спина до  $S \gtrsim 100$ . В зависимости от характера анизотропии (одноионная или межионная) на кривой намагничивания может происходить как появление скачка спина на величину, большую единицы, так и концентрация скачков в узкой области значений поля. Мы указали также области параметров задачи, где поведение квазиклассическое для малых спинов порядка  $S = 5$ , и область, где поведение существенно квантовое даже при  $S \rightarrow \infty$ .

PACS: 75.30.Kz, 75.50.Ee, 75.60.Ej

В последнее десятилетие широко изучаются как экспериментально, так и теоретически мезоскопические магнитные системы, в которых значение полного спина  $S$  велико, но проявляются квантовые эффекты конечности спина. К таким системам относятся высокоспиновые молекулы со значением  $S \sim 10$ , магнитные кластеры с величиной  $S \sim 100$  и магнитные точки (малые магнитные частицы размером 50–100 нм), см. обзоры [1, 2]. Существование объектов, способных проявлять квантовые свойства в макроскопических (точнее, мезоскопических) масштабах важно как для фундаментальной физики магнетизма, так и для ее приложений: реализации идеи квантового компьютера [3, 4] и устройств записи информации [1]. Простейший квантовый эффект, проявляющийся для подобных систем, напрямую обусловлен квантованием проекции полного спина системы и состоит в скачкообразном характере намагничивания при непрерывном изменении внешнего магнитного поля [1, 2]. Такое поведение наблюдалось для большого числа систем с преобладающим антиферромагнитным (АФМ) взаимодействием, см. обзор [5]. Среди таких систем наиболее изучены спиновые пары с АФМ взаимодействием, в том числе пары высокоспиновых молекул  $Mn_4$  с максимальным значением суммарного спина  $2S = 9$  [6, 7], но измерения проводились и для спиновых триплетов, квартетов и т.д. [5, 8]. Метод скачков намагченности оказался полезным для экспериментального определения констант материалов [5].

Для реализации этого метода оказалось важным, что при учете только изотропного обмена и внеш-

него поля, то есть  $B = 0$  и  $\kappa = 0$  в приведенном ниже гамильтониане (1), квантовая задача имеет точное решение для произвольного значения спина. В этом случае собственными состояниями гамильтониана являются состояния с заданными значениями полного спина  $S$  и его проекции  $S^z$ , и для фиксированного  $S$  минимуму энергии отвечает максимальное значение  $S^z$ ,  $S^z = S$ . Энергия состояний определяется выражением  $E(S, S^z) = JS(S + 1)/2 - g\mu_B HS^z$ , и величина  $S^z$  изменяется скачками от  $S^z = n - 1$  до  $S^z = n$  при поле  $H_n = Jn/g\mu_B$ , полное насыщение достигается при  $H = H_{ex}$ , где обменное поле  $H_{ex} = 2JS/g\mu_B$ . Другие точно решаемые модели кластеров с АФМ взаимодействием обсуждались в работе [8]. При наличии магнитной анизотропии квантовая задача не имеет точного решения, за исключением модели Изинга, которой отвечают значения  $\kappa = 1$ ,  $B = 0$  в гамильтониане (1). В этом случае, по существу классическом, значение  $S^z = 0$  при  $H < H_{ex}$  и состояние насыщено,  $S^z = 2S$  при  $H > H_{ex} = JS/g\mu_B$ .

Нами исследовано изменение намагченности пары спинов с АФМ взаимодействием и одноосной анизотропией под действием магнитного поля, параллельного легкой оси АФМ. Оказалось, что кривая намагничивания устроена сложнее, чем в чисто обменном случае: скачки могут становиться неэквидистантными, а их величина  $\Delta S^z$  может превышать единицу. Поведение кривой намагничивания различно для одноионной и обменной анизотропий. Отмечено сходство поведения спиновой пары и макроскопического АФМ вблизи спин-флоп перехода (СФП), что может оказаться полезным для качественной оценки поведения системы. Обнаружена также область по-

<sup>1)</sup>e-mail: kireev@imag.kiev.ua

лей, где даже в пределе  $S \rightarrow \infty$  отклонения от классической картины не малы.

**Квантовая модель и ее квазиклассический анализ.** Запишем гамильтониан пары спинов  $\mathbf{S}_1$  и  $\mathbf{S}_2$  с АФМ взаимодействием с обменным интегралом  $J > 0$  и одноосной анизотропией во внешнем магнитном поле  $\mathbf{H}$ , направленном по легкой оси  $z$ :

$$\mathcal{H} = J[S_1^z S_2^z + (1 - \kappa) \mathbf{S}_1^\perp \mathbf{S}_2^\perp] - \frac{B}{2}[(S_1^z)^2 + (S_2^z)^2] - g\mu_B H(S_1^z + S_2^z). \quad (1)$$

Здесь учтены как одноионная анизотропия с константой  $B$ , так и обменная анизотропия с константой  $\kappa J$ . Начнем с классического анализа задачи. Если считать, что операторы  $\mathbf{S}_1$  и  $\mathbf{S}_2$  суть классические векторы (спины подрешеток) макроскопического образца АФМ, возникает полезная аналогия с задачей о СФП, см. монографии и обзор [9–11]. Введем единичный вектор  $\mathbf{l} = (\mathbf{S}_1 - \mathbf{S}_2)/|\mathbf{S}_1 - \mathbf{S}_2|$ ; в угловых переменных  $l_z = \cos \theta$ ,  $l_x + il_y = \sin \theta \exp(i\phi)$ . Исключая вектор суммарного спина  $\mathbf{S}_{\text{tot}} = \mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2$  с помощью соотношения

$$\mathbf{S}_{\text{tot}} = \frac{2g\mu_B H(\mathbf{e}^z - \mathbf{l} \cdot \cos \theta)}{J(2 - \kappa + \beta \cos 2\theta)}, \quad (2)$$

где  $\beta = B/J$  и  $\mathbf{e}^z$  – единичный вектор вдоль оси симметрии, см. детали в [11], можно записать энергию  $\mathcal{W}(\theta)$  АФМ в виде

$$\mathcal{W}(\theta) = -\frac{(g\mu_B H)^2 \sin^2 \theta}{J(2 - \kappa + \beta \cos 2\theta)} + J(\kappa + \beta)S^2 \sin^2 \theta. \quad (3)$$

При отсутствии поля получается стандартный результат: как обменная, так и одноионная анизотропии вносят аддитивный вклад в эффективную магнитную анизотропию  $(\kappa + \beta)JS^2 \sin^2 \theta$ , которая является легкоосной при  $\kappa + \beta > 0$ . Минимизация этой энергии при  $H \neq 0$  дает существование различных фаз. Коллинеарная фаза  $\Phi_{\parallel}$  устойчива при  $H < H_1$ , в ней  $S^z = 0$  и  $\theta = 0$  или  $\pi$ . В спин-флоп фазе  $\Phi_{\perp}$ , устойчивой при  $H > H_2$ ,  $\theta = \pm\pi/2$ , а проекция спина линейно зависит от поля,  $S^z = 2SH/H_{ex}$ . При  $H \geq H_{ex} = JS(2 - \kappa - \beta)/g\mu_B$  состояние насыщено и  $S^z = 2S$ . Характерные поля потери устойчивости фаз определяются как

$$H_1 = \frac{JS}{g\mu_B} \sqrt{(2 - \kappa + \beta)(\kappa + \beta)}, \quad H_2 = \frac{H_1^2}{H_{sf}}, \quad (4)$$

$$H_{sf} = \frac{JS}{g\mu_B} \sqrt{(2 - \kappa - \beta)(\kappa + \beta)}. \quad (5)$$

Отметим, что при отсутствии одноионной анизотропии выражение для обменного поля совпадает с полем насыщения для точно решаемых квантовых задач Гайзенберга и Изинга.

Если анизотропия чисто обменная,  $\beta = 0$ , то возникает вырожденный случай, когда критические поля  $H_1$  и  $H_2$  совпадают. Если  $\beta > 0$ , то переход от коллинеарного состояния  $\Phi_{\parallel}$  к спин-флоп состоянию  $\Phi_{\perp}$  идет скачком (СФП является переходом первого рода) при введенном в (4) поле  $H = H_{sf}$  с изменением  $S^z$  на величину  $\Delta S_{cl}^z$ , где

$$\Delta S_{cl}^z = 2S \sqrt{\frac{\kappa + \beta}{2 - \kappa - \beta}}. \quad (6)$$

Для спиновой переориентации возможна также реализация другого случая, когда  $H_1 < H_2$  и переход  $\Phi_{\parallel} \leftrightarrow \Phi_{\perp}$  идет путем двух переходов второго рода через угловую фазу  $\Phi_{\angle}$  [10, 11]. В модели (3) для этого необходимо наличие конкурирующих анизотропий – одноионной с  $\beta < 0$ , что при  $\kappa = 0$  соответствует легкоплоскостной анизотропии, и достаточно большой обменной с  $\kappa > -\beta$ , с тем, чтобы эффективная магнитная анизотропия была легкоосной. Тогда в интервале полей  $H_1 < H < H_2$  величина  $S^z$  изменяется линейно от 0 до  $\Delta S^z|_{H=H_2} \approx \Delta S_{cl}^z$ , но наклон прямой значительно больший, чем в области спин-флоп фазы, рис.1.

**Квантовые закономерности.** Эти результаты можно соотнести с закономерностями намагничивания для квантовой модели (1) в случае большого спина, если принять в качестве гипотезы, что, как и в точно решаемом изотропном случае, все непрерывные классические линейные зависимости  $S^z(H)$ , рис.1, заменяются на ступенчатые зависимости с эквидистантными скачками на величину  $\Delta S^z = 1$ , а скачок  $\Delta S_{cl}^z > 1$  в точке СФП сохранится и в квантовом случае. Это имеет смысл, когда величина поля СФП больше, чем поле первого квантового скачка в изотропном случае  $H_{sf} > J/g\mu_B$ , а величина  $\Delta S_{cl}^z > 1$ . Оба эти условия приводят к неравенству  $\kappa + \beta > 1/2S^2$ , которое для  $S \gg 1$  может выполняться даже при малых анизотропиях.

Поведение системы удобно представить на плоскости  $(b, \beta)$ , где  $b = \kappa + \beta$  есть константа эффективной анизотропии, см. (3). Согласно классическому рассмотрению, СФП со скачком спина на  $\Delta S_{cl}^z > 1$  может реализовываться только при  $\beta > 0$ , а области с различным значением  $\Delta S_{cl}^z = n > 1$  представляют собой вертикальные полосы, ограниченные снизу линией  $\beta = 0$ , а справа и слева вертикальными линиями со значениями  $b = b_n$  и  $b = b_{n+1}$ , где

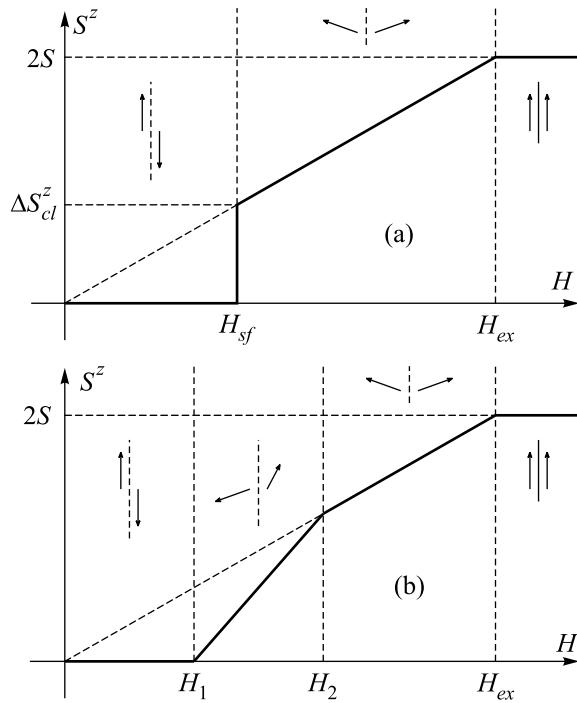


Рис.1. Основное состояние классического АФМ с обменной и одноионной анизотропией при различных значениях поля (схематически). Стрелки изображают направления спинов в различных состояниях АФМ. (а) преобладает одноионная анизотропия; (б) преобладает обменная анизотропия

$b_n = 8n^2/(n^2 + 4S^2)$ . При малой анизотропии, как и в области легкоплоскостной анизотропии  $b < 0$ , можно ожидать характерного для изотропного случая поведения с эквидистантными скачками на величину  $\Delta S^z = 1$ . При большой анизотропии  $b$  в случае  $\beta < 0$  величина  $S^z = 0$  сохраняется до поля  $H_1$ , а далее происходит концентрация  $n$  скачков в узком интервале полей  $H_1 < H < H_2$ . Таким образом, классический подход предсказывает достаточно богатое поведение системы, что подтверждают результаты численного анализа квантовой модели (1) с одним существенным исключением, которое обсуждается ниже.

**Численное моделирование.** Гамильтониан (1) коммутирует с оператором полной проекции спина  $\hat{S}^z = \hat{S}_1^z + \hat{S}_2^z$ , и полное гильбертово пространство задачи расщепляется на подпространства с фиксированными значениями  $S^z$ . Оператор (1), спроектированный на эти подпространства, имеет вид трех диагональных матриц, собственные значения которых находятся с помощью QR-алгоритма. Важное упрощение обусловлено тем, что зеемановское слагаемое коммутирует с  $\hat{S}^z$  и собственные значения гамильтониана  $E(S^z, 0)$ , полученные для  $H = 0$ , могут использоваться для любого поля путем их сдви-

га,  $E(S^z, H) = E(S^z, 0) - g\mu_B HS^z$ . Все это позволяет проанализировать задачу на всей фазовой плоскости  $(\kappa, \beta)$  даже для больших значений спина выше  $2S = 250$  за разумное время на персональном компьютере.

Численное исследование показало, что многие закономерности классического СФП проявляются и для квантовой модели (1) даже в случае не очень большого спина  $S \sim 5$ . Прежде всего, сохраняется свойство анизотропного АФМ, при котором с  $S^z = 0$  существует в интервале полей  $0 < H < H_1$ , и наличие скачков  $\Delta S^z > 1$  при  $\beta > 0$ , когда классический СФП является переходом первого рода. Наблюдалось также и предсказанное классической теорией сгущение скачков в узкой области полей  $H_1 < H < H_2$ . Форма областей с данным  $\Delta S^z > 1$  качественно соответствует классическому расчету даже при небольших значениях спина. В частности, линии, ограничивающие области с  $\Delta S^z = n > 1$  при  $\beta > 0$ , близки к вертикальным, рис.2. Однако даже качественные от-

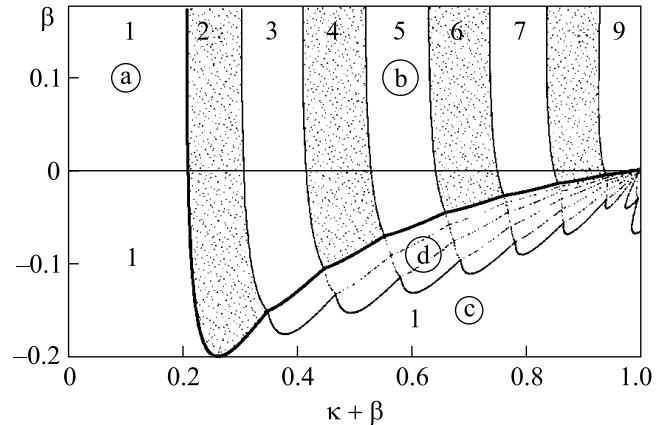


Рис.2. Области с различным поведением кривой намагничивания на плоскости  $(\kappa + \beta, \beta)$  для  $2S = 10$ . Линии разделяют области плоскости с различными значениями первого скачка  $\Delta S^z$  (его величина отмечена цифрами). Участки с четными значениями  $\Delta S^z$  затенены. Скачок с  $\Delta S^z = 10$  может происходить только при  $\kappa + \beta \geq 1$ , на рисунке ему отвечает единственная, изинговская точка  $\kappa = 1, \beta = 0$ . Буквами в кружках обозначены характерные области фазовой диаграммы; поведение  $S^z(H)$  для них дано на рис.3. Жирной кривой ограничена область, где первый скачок  $\Delta S^z > 1$ ; кривая под ней — расчерченная параллелограммами область, где первый скачок  $\Delta S^z = 1$ , но среди последующих скачков есть значение  $\Delta S^z > 1$ , см. рис.3d и объяснение в тексте

клонения вполне заметны. Прежде всего, для малых  $\Delta S^z$  области с  $\Delta S^z > 1$  простираются и в нижнюю полуплоскость.

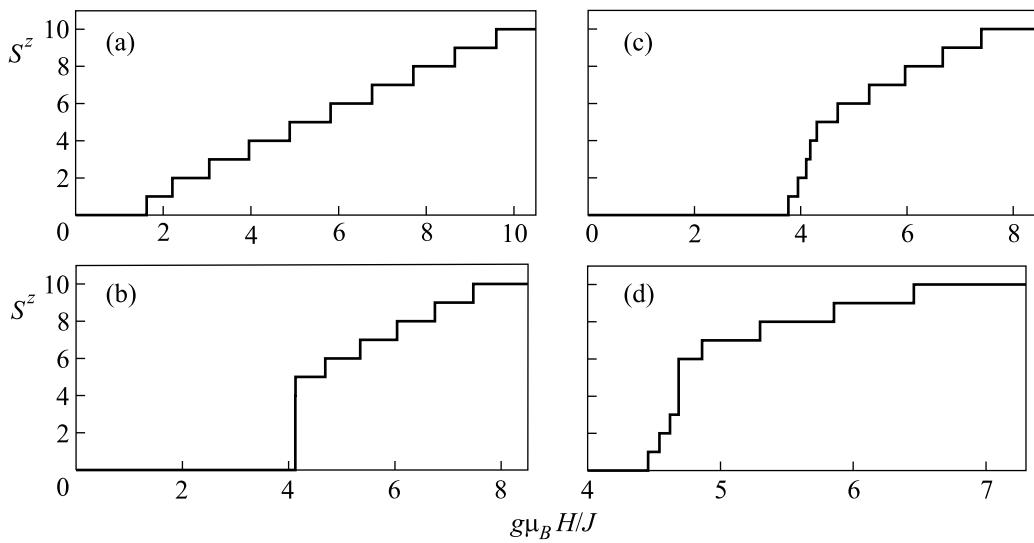


Рис.3. Зависимость  $S^z$  от поля для четырех характерных областей, обозначенных буквами на рис.2. Данные получены для  $2S = 10$ . (а) Почти обменное поведение:  $b = 0.1$ ,  $\beta = -0.2$ ; (б) слияние скачков, аналог СФП:  $b = 0.515$ ,  $\beta = 0.1$ ; (с) сильная концентрация скачков, аналог поведения в фазе  $\Phi_\angle$ :  $b = 0.56$ ,  $\beta = -0.1$ ; (д) скачок с  $\Delta S^z > 1$  из состояния с  $S^z \neq 0$ , аналог фазового перехода первого рода  $\Phi_\angle \leftrightarrow \Phi_\perp$ ,  $\beta = -0.09$ ,  $b = 0.7$ , см. подробнее рис.5

Абсолютно неожиданным для нас оказалось поведение линии, разделяющей области с  $\Delta S^z = 1$  и  $\Delta S^z > 1$ . Для нее отклонения от классического результата  $\beta = 0$  оказались не малыми даже в случае больших спинов  $2S \simeq 200$ , рис.4. Максимальный раз-

ное значение  $\beta \sim -0.3$ , но ее площадь при  $S \rightarrow \infty$  уменьшается.

Кроме того, на кривой намагничивания, область параметров  $d$  на рис.2 и рис.3д, для угловой фазы обнаружены скачки на величину, большую единицы, что отвечает в пределе большого спина фазовому переходу первого рода  $\Phi_\angle \leftrightarrow \Phi_\perp$ , хотя в классической теории этот переход имеет второй род и область  $d$  отсутствует. Кроме того, на кривой намагничивания в области концентрации скачков (ниже жирной линии на рис.2) обнаруживается неэквидистантность скачков с  $\Delta S^z = 1$ , см. рис.3с, и даже слияние некоторых из них, рис.3д. В последнем случае, который отвечает узкой области  $d$  на рис.2, картина намагничивания такая: несколько первых скачков имеют значение  $\Delta S^z = 1$ , потом следует скачок на величину  $\Delta S^z > 1$  (всегда один), и лишь затем проявляется картина с эквидистантными скачками с  $\Delta S^z = 1$ . В терминах спин-флоп аналогии, это поведение отвечает тому, что переход  $\Phi_\angle \leftrightarrow \Phi_\perp$  имеет первый род, что в рамках классической модели (3) реализоваться не может. Более подробно структура области  $d$  представлена на рис.5 для  $2S = 64$ . Переходу из состояния с  $S^z \neq 0$  в состояние с  $S^z + \Delta S^z$ ,  $\Delta S^z > 1$ , отвечает область в форме параллелограмма на диаграмме  $(b, \beta)$ , рис.2, область  $d$ . Причем области с  $S^z$  и  $S^z \pm 1$  граничат друг с другом, а области с одинаковыми  $\Delta S^z$  стыкуются в точках, что и обуславливает пилообразную форму кривых с  $\Delta S^z > \text{const}$  на рис.5. Однако, как видно из изолиний на этом рисунке и

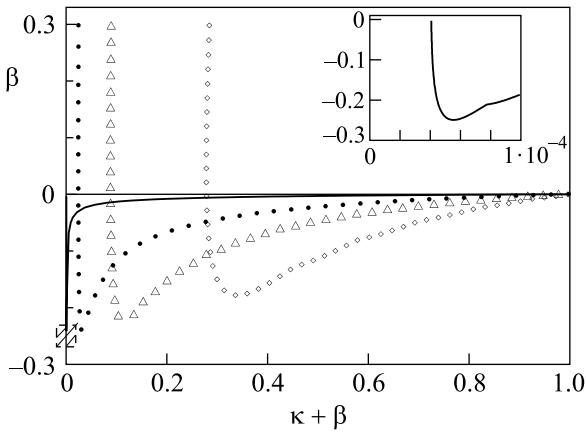


Рис.4. Линии раздела спин-флоп и угловой фазы для трех значений спина:  $\diamond - 2S = 8$ ;  $\triangle - 2S = 16$ ;  $\bullet - 2S = 32$ ; сплошной линией обозначены данные для  $2S = 256$ . Штриховым прямоугольником обозначена область, где находится минимум сплошной линии. На вставке – эта область и прилегающий к оси ординат участок кривой для  $2S = 256$

мер этой области в отрицательном направлении оси  $\beta$  даже растет с ростом спина и выходит на предель-

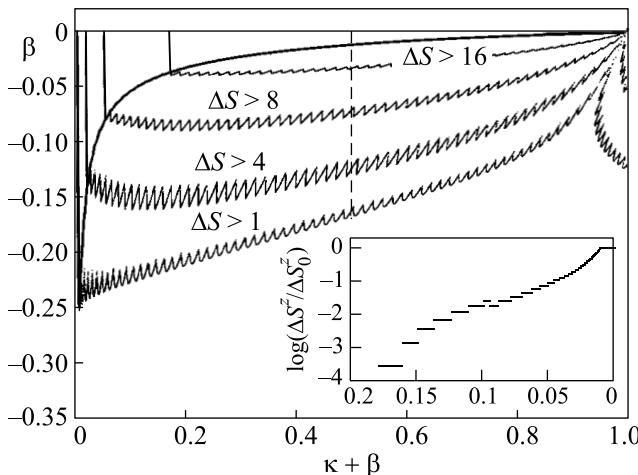


Рис.5. Линии, ограничивающие области с фиксированным значением скачка при переходе  $\Phi_\perp \leftrightarrow \Phi_\perp$  для  $2S = 64$ . Выше жирной линии скачок на  $\Delta S^z > 1$  идет из состояния с  $S^z = 0$ , сравни с соответствующими линиями на рис.2 и рис.4. Ниже этой линии расположены области, в которых скачок  $\Delta S^z$ , больший некоторого значения (отмеченного неравенством), идет из состояния с  $S^z > 0$ . На вставке – сечение графика для  $\kappa + \beta = 0.5$  (штриховая линия); по оси ординат отложен логарифм нормированного на  $\Delta S_0^z \equiv \Delta S^z|_{\beta=0}$  скачка

графика на вставке, величина скачка быстро убывает при отходе от линии раздела состояний с  $\Delta S^z = 1$  и с  $\Delta S^z > 1$  в сторону отрицательных  $\beta$ .

**Результаты и обсуждение.** Таким образом, мы обнаружили достаточно сложное поведение ступенчатых квантовых кривых намагничивания для пары спинов с АФМ взаимодействием и легкоосной анизотропией, зависящее от соотношения двух констант анизотропии различного происхождения в гамiltonиане (1). Если преобладает одноионная анизотропия, то может происходить "слияние" одиничных скачков с образованием скачка на величину  $\Delta S^z > 1$ . В противоположном случае, когда доминирует обменная анизотропия, все скачки  $S^z$  равны единице, но они сконцентрированы в узкой области значений поля. Мы обнаружили определенные параллели в свойствах решения квантовой проблемы и соответствующей ей классической задачи о СФП даже для достаточно малых спинов  $S \sim 5$ , которые могут быть полезными в качестве исходной точки для ана-

лиза экспериментов и исследования влияния других типов взаимодействий, что выходит за рамки этого краткого сообщения. В то же время, существуют количественные различия в поведении квантовой системы и ее классического аналога. Эти различия особенно принципиальны в той области полей, где происходит переход от  $\Delta S^z = 1$  к  $\Delta S^z = 2$ , так как здесь проявляются квантовые эффекты, которые не содержат малости порядка  $1/S$ . Объяснение этого неожиданного факта связано, по-видимому, с тем, что при малой анизотропии квантовая модель имеет синглетное основное состояние, которое сильно отличается от классической неелевской картины. Таким образом, для системы обнаружена область чисто квантового поведения при  $S \rightarrow \infty$ . В физике антиферромагнетизма подобные эффекты возможны, достаточно отметить гипотезу Холдейна о том, что основное состояние квантовой спиновой цепочки различно для целых и полуцелых спинов даже при  $S \rightarrow \infty$  [12]. Таким образом, рассмотренная нами простая модель двух спинов еще раз демонстрирует тот факт, что АФМ могут проявлять существенно квантовые свойства даже при немальных значениях спина.

1. W. Wernsdorfer, Adv. Chem. Phys. **118**, 99 (2001).
2. R. Skomski, J. Phys.: Condens. Matter **15**, R841 (2003).
3. W. Wernsdorfer, N. Aliaga-Alcalde, D. Hendrickson, and G. Christou, Nature **416**, 406 (2002).
4. M. N. Leuenberger and D. Loss, Nature **416**, 789 (2001).
5. Y. Shapira and V. Bindilatti, J. Appl. Phys. **92**, 4155 (2002).
6. W. Wernsdorfer et al., Phys. Rev. **B65**, 180403 (2002).
7. R. S. Edwards, et al., Polyhedron **22**, 1911 (2003).
8. O. Waldmann, Phys. Rev. **B61**, 6138 (2000).
9. А. С. Боровик-Романов, *Антиферромагнетизм. Итоги науки*, М.: Изд. АН СССР, 1962.
10. К. П. Белов, А. К. Звездин, А. М. Кадомцева, Р. З. Левитин, *Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках*, М.: Наука, 1979.
11. V. G. Bar'yakhtar and B. A. Ivanov, in *Intermediate state and the dynamic and static properties of domain walls in two-sublattice magnets*, Vol. 6 of Sov. Sci. Rev. Sec. A-Phys., Ed. I. M. Khalatnikov. Harwood, Amsterdam, 1985, p. 404.
12. F. D. M. Haldane, Phys. Rev. Lett. **50**, 1156 (1983).