Письма в ЖЭТФ, том 69, вып.5, стр.369 - 374

МАКРОСКОПИЧЕСКОЕ КОГЕРЕНТНОЕ ТУННЕЛИРОВАНИЕ В МАЛОЙ ЧАСТИЦЕ НЕСКОМПЕНСИРОВАННОГО АНТИФЕРРОМАГНЕТИКА В СИЛЬНОМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ

Б.А.Иванов, В.Е.Киреев

Институт магнетизма НАН Украины

252142 Киев, Украина

Поступила в редакцию 10 декабря 1998 г.

После переработки 2 февраля 1999 г.

Для частицы нескомпенсированного антиферромагнетика типа ферритина, находящегося в неколлинеарной фазе, индуцированной сильным магнитным полем, предсказан новый эффект макроскопического квантового туннелирования.

PACS: 75.45.+j, 75.50.Tl, 75.60.Lr

В последние годы явление макроскопического квантового туннелирования (МКТ) в магнетиках широко изучается как экспериментально, так и теоретически. Особое внимание проявляется к когерентному МКТ (КМКТ) – явлению туннелирования между энергетически эквивалентными, но макроскопически различными состояниями, когда может реализовываться квантовая суперпозиция почти классических состояний магнетика (см., например, [1–3]). Такой интерес обусловлен двумя обстоятельствами. Во-первых, в этом случае можно непосредственно наблюдать туннелирование по резонансному поглощению на расщепленных уровнях. Во-вторых, при анализе КМКТ возникают тонкие и красивые эффекты деструктивной интерференции, например, зависимость вероятности туннелирования намагниченности от того, целым или полуцелым является полный спин частицы. Однако эти эффекты наблюдать значительно сложнее, чем, например, квантовую магнитную релаксацию (депиннинг стенок), и нам известно только несколько работ, в которых они наблюдались [4, 5]. В этих работах использовались малые антиферромагнитные частицы ферритина, содержащие примерно 4500 магнитных ионов железа, с нескомпенсированным спином около 50. Обсуждавшиеся ранее эффекты МКТ в малых частицах ферромагнетика и нескомпенсированного антиферромагнетика (АФМ) всегда приводят к появлению одной линии резонансного поглощения. В тех условиях, когда эта линия может наблюдаться (достаточно низкие температуры, отсутствие магнитного поля), практически невозможно найти параметр, измерение которого управляло бы положением этой линии, что затрудняет ее однозначную трактовку. Обсуждавшаяся в [6–8] осциллирующая зависимость вероятности туннелирования в малых частицах магнетиков от внешнего магнитного поля давала, казалось бы, хорошую возможность проверки того, что наблюдаемая линия действительно вызывается КМКТ. Но этот эффект существовал лишь для полностью скомпенсированного АФМ (иначе магнитное поле полностью снимает вырождение в системе), да и то при условии строго определенной ориентации поля относительно кристаллографических осей. Ясно, что эти условия для ансамбля большого числа малых АФМ частиц типа ферритина, в которых спины подрешеток не полностью скомпенсированы (хотя бы из-за влияния поверхности), не могут быть реализованы.

В этом письме мы обсудим новый тип эффектов КМКТ для свободно ориентирующейся АФМ частицы с неполной компенсацией спинов, находящейся во внешнем поле. Основной особенностью этого эффекта является то, что в достаточно сильном поле намагниченности подрешеток неколлинеарны и частица ориентируется полем таким образом, что в системе может появляться двукратное вырождение классического основного состояния. Высота туннельного барьера и фазовый фактор амплитуды туннелирования существенно зависят от величины поля, что дает возможность управлять вероятностью туннелирования путем изменения поля.

Рассмотрим систему спинов, в которой ближайшие соседи связаны антиферромагнитным взаимодействием. Будем считать, что все узлы решетки, в которых расположены спины, можно разбить на две группы таким образом, что спины, входящие в пары ближайших соседей, относятся к различным группам и фрустрации отсутствуют. Для идеального АФМ эти две группы соответствуют двум магнитным подрешеткам. Гамильтониан такой системы с учетом одноосной анизотропии и внешнего магнитного поля $\mathbf{H}$ запишем в виде

$$\hat{H} = J\sum_{\mathbf{r},\mathbf{r}'} \mathbf{S}_{\mathbf{r}}\mathbf{S}_{\mathbf{r}'} + K\left[\sum_{\mathbf{r}}(S^z_{\mathbf{r}})^2 + \sum_{\mathbf{r}'}(S^z_{\mathbf{r}'})^2\right] - g\mu_B\mathbf{H}\left(\sum_{\mathbf{r}}\mathbf{S}_{\mathbf{r}} + \sum_{\mathbf{r}'}\mathbf{S}_{\mathbf{r}'}\right). \qquad (1)$$

Здесь J – обменный интеграл, векторы $\mathbf{r}$ и $\mathbf{r}'$ нумеруют узлы первой и второй групп, соответственно, $K > 0$ – константа легкоплоскостной анизотропии, g – гиромагнитное отношение, μ_B – магнетон Бора, $\mathbf{H}$ – магнитное поле, в первом слагаемом суммирование производится только по парам ближайших соседей. Мы будем считать, что энергия анизотропии мала по сравнению с обменной, что отвечает неравенству $K \ll J$. Для простоты полагается, что все спины идентичны (то есть имеют одинаковую величину спина, g-фактор, константу анизотропии и т.д.). Обобщение на случай неэквивалентных спинов для используемого ниже приближения (однородное вращение намагниченности подрешеток) не представляет труда.

Обсудим основное состояние этой системы. Понятно, что при учете только обменного взаимодействия и анизотропии спины, расположенные в каждой из двух групп узлов, ориентируются антипараллельно, образуя суммарные спины подрешеток $\mathbf{S}_1 = \sum_{\mathbf{r}} \mathbf{S}_{\mathbf{r}}$, $\mathbf{S}_2 = \sum_{\mathbf{r}'} \mathbf{S}_{\mathbf{r}'}$, лежащие в легкой плоскости. Такая же ориентация сохранится и для случая нескомпенсированного АФМ. Однако воздействие магнитного поля существенно отличается для случая скомпенсированного АФМ и случая, когда $S_1 \neq S_2$.

Действительно, при $S_1 \neq S_2$ (для определенности читаем, что $S_1 > S_2$) в обменном приближении система обладает ненулевым магнитным моментом. Этот момент будет стремиться ориентироваться по направлению поля, то есть таким образом, что $\mathbf{S}_1$ параллельно полю, а $\mathbf{S}_2$ антипараллельно. Кроме этого, линейного по $\mathbf{H}$ ферримагнитного эффекта, существует другой ориентационный эффект магнитного поля, проявляющийся также и при $S_1 = S_2$, связанный с тем, что восприимчивость АФМ максимальна в направлении, перпендикулярном $\mathbf{S}_1$ и $\mathbf{S}_2$. Этот эффект квадратичен по $\mathbf{H}$, и в слабых полях его роль мала. Как известно, в силу этого в нескомпенсированном магнетике типа ферримагнетика могут возникать состояния, в которых подрешетки неколлинеарны (см., например, [7]). Здесь реализуется та же ситуация. Ясно, что $\mathbf{S}_1$ и $\mathbf{S}_2$ будут лежать в легкой плоскости и частица под действием поля сориентируется так, что легкая плоскость будет параллельна полю. Тогда основное

состояние определяется углами θ_1, θ_2 между $\mathbf{S}_1$, $\mathbf{S}_2$ и полем. Значения этих углов находятся путем минимизации суммы зеемановской и обменной энергий. Элементарный анализ (1) дает, что при $H \leq H_c$ или $H \geq H_e$, где

$$H_c = \frac{Js^2 N_z S_{ex}}{g\mu_B S_1 S_2}, \quad H_e = \frac{Js^2 N_z S_{tot}}{g\mu_B S_1 S_2} \tag{2}$$

(здесь N_z – число пар ближайших соседей, s – спин узла, $S_{ex} = S_1 - S_2$ – нескомпенсированный спин частицы, $S_{tot} = S_1 + S_2$ – полный спин), спины подрешеток коллинеарны друг другу и направлению $\mathbf{H}$. При $H < H_c$ значения $\theta_1 = 0$, $\theta_2 = \pi$, при $H > H_c$ углы $\theta_1 = \theta_2 = 0$. В этом случае классическое основное состояние частицы невырождено и эффекты когерентного МКТ отсутствуют. Однако при $H_c < H < H_e$ спины $\mathbf{S}_1$ и $\mathbf{S}_2$ неколлинеарны. При этом суммарный магнитный момент параллелен $\mathbf{H}$, то есть $S_1 \sin\theta_1 + S_2 \sin\theta_2 = 0$, но состояние системы двукратно вырождено по отношению к знакам проекций $\mathbf{S}_1$, $\mathbf{S}_2$ на направление, перпендикулярное $\mathbf{H}$ и лежащее в легкой плоскости.

В интересующем нас случае $S_1 \approx S_2$ значение $H_e \simeq 2JZs/g\mu_B$, где $Z = 2N_z s/S_{tot}$ – эффективное число ближайших соседей, совпадает с обменным полем АФМ, величина $H_c = H_e S_{ex}/S_{tot} \ll H_e$. Поэтому в широком диапазоне полей основное состояние частицы двукратно вырождено, и возможны эффекты когерентного МКТ. Для частиц ферритина можно считать $S_1 \simeq S_2 \simeq 5 \cdot 10^3$, $S_{ex} \simeq 50$, $H_e \simeq 10^4$ кЭ [5], что дает $H_c \simeq 50$ кЭ, и мы ограничимся анализом случая $H_c \leq H \ll H_e$. При $H \ll H_e$ векторы $\mathbf{S}_1$ и $\mathbf{S}_2$ приблизительно антипараллельны и суммарный спин $\mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2$ мал по сравнению с разностью $\mathbf{S}_1 - \mathbf{S}_2$, $|\mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2| \ll |\mathbf{L}|$, $\mathbf{L} = \mathbf{S}_1 - \mathbf{S}_2$. В этом случае динамика АФМ может быть описана на основе обобщения хорошо известной нелинейной σ-модели на случай нескомпенсированных АФМ, проведенного как для классического магнетика [9], так и для квантового случая с использованием спиновых когерентных состояний [10]. В этой модели динамической переменной является единичный вектор $\mathbf{l} = \mathbf{L}/|\mathbf{L}|$, а намагниченность определяется величиной магнитного поля, $\mathbf{l}$ и $\partial\mathbf{l}/\partial t$, см. [9, 10].

Евклидов лагранжиан для вектора $\mathbf{l}$ в угловых переменных запишем в виде

$$\mathcal{L} = -i\hbar S_{tot}\dot{\varphi} + i\hbar S_{ex}\dot{\varphi}\cos\theta + \frac{\hbar S_{tot}}{\gamma H_e}\left[\frac{1}{2}(\dot{\theta}^2 + \sin^2\theta\dot{\varphi}^2) - i\gamma H\dot{\varphi}\sin^2\theta\right] + W_{st}. \tag{3}$$

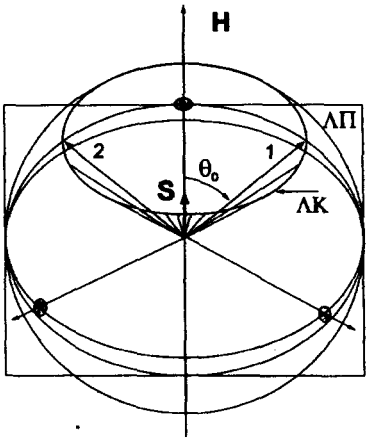
Здесь $\mathbf{H}$ направлено по оси квантования z, $\gamma = g\mu_B/\hbar$, точкой обозначено дифференцирование по мнимому времени $\tau = it$, $W_{st}(\theta, \varphi)$ – статическая энергия частицы, записанная через вектор $\mathbf{l}$, см. ниже. Этот лагранжиан отличается от выписанного ранее в [10] только слагаемым $i\hbar(S_{ex} - S_{tot})\dot{\varphi} = -2sN_z i\hbar\dot{\varphi}$, являющимся полной производной. Для рассматриваемых ранее [11] инстантонных решений, в которых изменение угла φ равно π, оно сводится к $2\pi s i\hbar N_z$ и кратно $i\pi\hbar$ как для целых, так и для полуцелых спинов, что не изменяет вероятности туннелирования. Однако в нашем случае, когда изменение φ может и отличаться от π, учет этого слагаемого важен. Характер распределения $\mathbf{l}(\tau)$ в инстантонном решении определяется видом статической энергии, которую удобно представить как

$$W_{st} = \frac{(g\mu_B S_{tot})^2}{8JN_z s^2}(\mathbf{Hl} - H_c)^2 + KsS_{tot}(\mathbf{ln})^2, \tag{4}$$

где $\mathbf{n}$ – трудная ось. Здесь первое слагаемое определяет энергию взаимодействия $\mathbf{l}$ с магнитным полем, а второе дает энергию анизотропии. Эта формула позволяет наглядно представить характер основного состояния нескомпенсированного АФМ, а также масштаб изменения энергии при отклонении от него (см. рисунок). Минимуму первого слагаемого при $H > H_c$ отвечает вектор $\mathbf{l}$, направленный по образующей конуса с углом полураствора $\theta_0 = \arccos H_c/H$ и осью вдоль $\mathbf{H}$, $\mathbf{lH} = H_c$. Минимуму второго слагаемого соответствует условие, что $\mathbf{l}$ лежит в легкой плоскости, $\mathbf{l} \perp \mathbf{n}$. С учетом того, что свободная частица ориентируется так, что поле $\mathbf{H}$ также находится в легкой плоскости, при $H_c < H < H_e$ основному состоянию отвечают два направления, образуемые пересечением между конусом $\mathbf{lH} = H_c$ и легкой плоскостью $\mathbf{ln} = 0$. Два слагаемых в W_{st} становятся одного порядка в поле

$$H_* = \frac{2s}{g\mu_B}\left(\frac{2JN_zKs}{S_{tot}}\right)^{1/2} \sim H_e\left(\frac{K}{J}\right)^{1/2}.$$

В интересующем нас случае почти скомпенсированной частицы слабоанизотропного магнетика значение H_*, как и введенного выше H_c, мало по сравнению с H_e, хотя соотношение между H_* и H_c может быть любым. Для частицы ферритина, согласно оценкам [5], величина $H_* \simeq H_c$.



Взаимное расположение векторов магнитного поля $\mathbf{H}$, суммарного спина $\mathbf{S}$ и вектора $\mathbf{l}$ в двух состояниях (обозначено *1* и *2*); ЛП – легкая плоскость, ЛК – легкий конус, $\cos\theta_0 = H_c/H$

Точные инстантонные решения могут быть построены в двух предельных случаях, $H \gg H_*$ и $H \ll H_*$ (естественно, во втором случае подразумевается, что $H_c < H$, то есть $H_e \ll H_*$). При $H \gg H_*$ определяющим является взаимодействие с магнитным полем, поэтому $\mathbf{l}$ движется вблизи конуса $\mathbf{lH} = H_c$, а анизотропия создает барьер, сквозь который идет туннелирование. В обратном случае, когда $H_c < H \ll H_*$, $\mathbf{l}$ движется в легкой плоскости $\mathbf{ln} = 0$, а барьер создается магнитным полем.

Начнем с более интересной ситуации слабой анизотропии $H \gg H_*$. В этом случае инстантонная траектория будет лежать вблизи конуса $\theta = \theta_0$. Введем отклонение от конуса – малый угол $\vartheta = \theta - \theta_0$. В основном приближении по H_*/H угол ϑ можно выразить через φ, $\dot\varphi$ и, исключив θ из (3), записать эффективный лагранжиан,

зависящий только от одной динамической переменной – азимутального угла φ:

$$\mathcal{L}_{eff} = -i\hbar S_{tot}\dot{\varphi} + i\hbar S_{ex}\frac{H_c}{H}\dot{\varphi} - i\hbar S_{tot}\frac{H}{H_e}\left(1 - \frac{H_c^2}{H^2}\right)\dot{\varphi} +$$

$$+\frac{\hbar S_{tot}}{2\gamma H_e}\sin^2\theta_0[\dot{\varphi}^2(1 + 9k^2\cot^2\theta_0) + (k\gamma H_* \cos\varphi)^2]. \qquad (5)$$

Здесь $k = 4S_1S_2/S_{tot}^2 \approx 1$, далее положим $k = 1$. Добавка в эффективную массу $9\cot^2\theta_0$ связана с отклонением траектории от конуса и содержит вклады, идущие как от гироскопического взаимодействия $\mathbf{l}$ с полем, так и от нескомпенсированного спина. Она преобладает при $\theta_0 \ll 1$ ($H \to H_c$), что возможно при $H_c \gg H_*$, то есть $S_{ex}/S_{tot} \gg (K/J)^{1/2}$. В этом случае, как известно [9], динамика имеет ферромагнитный характер. В то же время, при $\theta_0 \simeq \pi/2$ ($H \gg H_c$) эта поправка мала, что соответствует антиферромагнитному пределу. Это неравенство с учетом $H \gg H_*$ означает, что при наличии магнитного поля антиферромагнитная динамика может реализовываться при любом соотношении между H_c и H_* (или, иначе говоря, между S_{ex}/S_{tot} и $\sqrt{K/J}$), а условием ее реализации является, как отмечалось в [9], неравенство $S_{ex}/S_{tot} \ll \sqrt{K_{eff}/J}$, где $K_{eff} = K + (g\mu_B H)^2/8J$.

Инстантонные решения для лагранжиана (5) легко представить в виде

$$\cos\varphi = \pm\frac{1}{\cosh\Omega\tau}, \quad \Omega = \frac{\gamma H_*}{\sqrt{1 + 9\cot^2\theta_0}}. \qquad (6)$$

Евклидово действие для этих решений можно записать через

$$\mathcal{A}_{eu} = \hbar(A \pm i\Phi), \qquad (7)$$

где

$$\Phi = -\pi S_{tot} + \pi S_{ex}\left(2\frac{H_c}{H} - \frac{H}{H_c}\right), \quad A = 2S_{tot}\frac{H_*}{H_e}\frac{\sin^3\theta_0}{\sqrt{1 + 8\cos^2\theta_0}}. \qquad (8)$$

Частота туннелирования определяется суммой амплитуд, отвечающих двум инстантонным решениям (знаки + и – в (7)):

$$\Gamma = 8\pi\Omega A^{1/2}\left|\cos\left[\pi S_{ex}\left(2\frac{H_c}{H} - \frac{H}{H_c} - 1\right)\right]\right|\exp\left(-2S_{tot}\frac{H_*}{H_e}\frac{\sin^3\theta_0}{\sqrt{1 + 8\cos^2\theta_0}}\right); \qquad (9)$$

здесь под знаком cos опущено несущественное слагаемое $2\pi S_{tot}$. Вещественная часть действия, которая пропорциональна полному спину, отличается от аналогичного выражения для чистого АФМ числовым множителем, зависящим от θ_0 [7]. Этот множитель порядка единицы при $\theta_0 \sim 1$, а при $\theta_0 \to 0$ ($H \to H_c$) стремится к нулю как θ_0^3, то есть как $[(H - H_c)/H_c]^{3/2}$. Фазовое слагаемое существенно зависит от магнитного поля H. Характерно, что запрет на туннелирование, имевший место при полуцелом S_{ex} для скомпенсированного АФМ, отсутствует. При увеличении H фазовый фактор Φ монотонно растет и вероятность периода является осциллирующей функцией поля с характерным периодом $\Delta H = H_c H^2[S_{ex}(H^2 + 2H_c^2)]^{-1}$, зависящим от величины поля. При $H \sim H_c$ значение $\Delta H \simeq H_c/S_{ex}$ и может быть мало по сравнению с H_c для частиц ферритина $\Delta \simeq 1$ кЭ.

В случае $H_c < H \ll H_*$ инстантонная траектория лежит в легкой плоскости и эффекты деструктивной интерференции отсутствуют. Добавка в массу инстантона,

аналогичная $9\cot^2\theta_0$ (5), имеет малость порядка $(H_c/H_*)^2$ и динамика носит антиферромагнитный характер. Вещественная часть действия определяется формулой $A_2 = 2S_{tot}(\sin\theta_0 - \theta_0\cos\theta_0)H/H_e$. В промежуточной области $H \sim H_*$ надо учитывать как вещественную, так и мнимую часть 1 и точное решение построить не удается, но качественное поведение вероятности туннелирования нетрудно проанализировать. В этом случае, как и при $H \gg H_*$, существуют две инстантонные траектории для Rel, проходящие внутри конуса $\cos\theta = H_c/H$ и симметричные относительно легкой плоскости. Им отвечают одинаковые значения $\mathrm{Re}\mathcal{A}_{eu}$, а значения $\mathrm{Im}\mathcal{A}_{eu}$ отличаются только знаком. Поэтому формула (9) качественно применима и в случае, когда $H \gtrsim H_*$.

Работа поддержана грантом Фонда фундаментальных исследований Украины 2.4/27 "Туннель".

---

1. *Quantum tunneling of magnetization*, Eds L.Gunther and B.Barbara, vol.301 of NATO ASI Series E, Kluwert, Dordrecht, 1995.
2. E.M.Chudnovsky and J.Tejada, *Macroscopic Quantum Tunneling of the Magnetic Moment*, Cambridge University Press, 1988.
3. B.A.Ivanov and A.K.Kolezhuk, in: *Frontiers in Megnetism of Reduced Dimention Systems*, Eds. V.G.Bar'yakhtar, P.E.Wigen, and N.A.Lesnik, vol.49 of NATO ASI Series 3, High Technology, Kluwert, Dordrecht, 1988.
4. D.D.Awschalom, J.F.Smyth, G.Grinstein et al., Phys. Rev. Lett. **68**, 3092 (1992).
5. J.Tejada, X.X.Zhang, E. del Barco et al., Phys. Rev. Lett. **79**, 1754 (1997).
6. E.N.Bogachek and I.V.Krive, Phys. Rev. **B46**, 14559 (1992).
7. V.Yi.Golysev and A.F.Popkov, Europhys. Lett. **29**, 237 (1995); ЖЭТФ **108**, 1755 (1995).
8. A.Chiolero and D.Loss, Phys. Rev. Lett. **80**, 169 (1998).
9. B.A.Ivanov and A.L.Sukstanskii, Sol. St. Comm. **50**, 523 (1984); ЖЭТФ **84**, 370 (1983).
10. A.Chiolero and D.Loss, Phys. Rev. **B56**, 738 (1997).
11. К.П.Белов, А.К.Звездин, А.М.Кадомцева, Р.З.Левитин, *Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках*, М.: Наука, 1979.