

КВАНТОВОЕ ТУННЕЛИРОВАНИЕ В ФЕРРИМАГНИТНЫХ НАНОЧАСТИЦАХ ПРИ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ СО СПИНОВЫМ ТЕРМОСТАТОМ: ЭФФЕКТИВНЫЙ ГАМИЛЬТониАН

И.С.Тупицын

Российский научный центр "Курчатовский институт"
123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 25 ноября 1997 г.

Получен эффективный гамильтониан, описывающий квантовое туннелирование в ферримагнитных наночастицах при наличии сверхтонкого взаимодействия электронных спинов наночастицы с микроскопическими спинами окружения (такими, как парамагнитные примеси или ядерные спины). Найден критерий перехода между ферромагнитным и антиферромагнитным режимами туннелирования. Справедливость полученных формул проверена методом точной диагонализации.

PACS: 73.40.Gk, 75.10.Dg, 75.30.Gw, 75.50.Gg

1. Явление квантового туннелирования намагниченности (или вектора Нееля) в наночастицах в последние годы привлекает все большее внимание как с экспериментальной, так и с теоретической точки зрения, поскольку этот чисто квантовый эффект проявляется на макроскопических масштабах суммарного числа спинов порядка 10^4 и выше. Электронные спины наночастицы обменно спариваются друг с другом, формируя либо "гигантский центральный спин" – в ферромагнитном случае, либо "гигантский вектор Нееля" – в антиферромагнитном и могут когерентно туннелировать между двумя вырожденными состояниями, разделенными барьером, обусловленным наличием магнитной анизотропии. Теория когерентного туннелированию вектора намагниченности изложена в целом ряде работ [1] (для более полного обзора см. [2] и цитированную там литературу). Что же касается антиферромагнитных частиц, эффект туннелирования в них должен проявляться даже сильнее, чем в ферромагнитных [3] (для обзора современного состояния теории см. [3-9], эксперимента – [10]). При этом оказывается, что в обоих случаях чрезвычайно важную роль играет сверхтонкое взаимодействие электронных спинов частицы со спиновым термостатом, состоящим из ядерных спинов или парамагнитных примесей [11, 12]. Это взаимодействие оказывается настолько сильным, что способно полностью подавить квантовую когерентность [13]. Для теоретического анализа эффекта подавления когерентности при туннелировании можно ввести *эффективный гамильтониан*, описывающий низкоэнергетическую динамику системы "гигантский спин" (или "гигантский вектор Нееля") плюс спиновый термостат. Это означает ограничение исследуемой области энергий величиной $\ll \Omega_0$, характеризующей щель между нижним дублетом и возбужденными уровнями энергии, а Гильбертова пространства задачи – нижним дублетом, отвечающим противоположным пространственным ориентациям параметра порядка. Такой эффективный гамильтониан для "гигантского спина" был получен при помощи инстантонной техники в предыдущей работе автора [14]. В настоящей работе аналогичный эффективный гамильтониан будет получен для случая *ферримагнитной/антиферромагнитной* наночастицы. Для проверки спра-

ведливости полученного аналитического выражения будет использован метод точной диагонализации.

2. Воспользовавшись известным фактом, что модель Гейзенберга с антиферромагнитным упорядочением можно свести в длинноволновом пределе к нелинейной $O(3)$ σ -модели (как в одномерном, так и в двумерном случаях) [4, 5, 7, 9, 15], мы введем эффективную двухподрешеточную модель с сильным обменным взаимодействием между намагниченностями подрешеток, лагранжиан которой будет аналогичен лагранжиану $O(3)$ σ -модели (см., например, [3, 4, 8]). Но в отличие от указанных работ мы добавим сверхтонкое взаимодействие спинов подрешеток S_1 и S_2 со спинами окружения ($|\vec{\sigma}_i| = \frac{1}{2}$) в слабом магнитном поле \mathbf{H}_0 (взаимодействием спинов окружения между собой мы пренебрежем). Поскольку спины окружения могут находиться или внутри самой частицы или вблизи нее (на подложке), то без ограничения общности мы примем, что у нас имеется только одна парамагнитная примесь, расположенная в первой подрешетке. Тогда, выбрав магнитную анизотропию типа "легкая" ось/"легкая" плоскость, мы запишем стартовый гамильтониан в виде

$$\hat{H} = JS_1 \cdot S_2 + U(S_1) + U(S_2) + \frac{\omega_0}{2S_1} S_1 \cdot \vec{\sigma}, \quad U(S) = -K_{\parallel} S_z^2 + K_{\perp} S_y^2 - \gamma_e \mathbf{H}_0 \mathbf{S}, \quad (1)$$

где ω_0 - константа сверхтонкого взаимодействия, $K_{\parallel} > 0$ и $K_{\perp} > 0$ - константы магнитной анизотропии, $J \gg K_{\parallel}, K_{\perp} \gg K_{\parallel}, \gamma_e S_{1,2} |\mathbf{H}_0| \ll 2K_{\parallel} S_{1,2}^2, \omega_0 \ll 2K_{\parallel} S_{1,2}^2$. Приняв, что $S_1 + S_2 \gg 1$, мы для решения выберем квазиклассическое описание.

В соответствии с тем, что мы интересуемся только низкоэнергетической динамикой системы, вклад в амплитуду перехода между двумя нижними уровнями энергии дадут лишь траектории с почти антипараллельными (то есть слабо флуктуирующими по направлению друг относительно друга) S_1 и S_2 . Это означает, что будет туннелировать почти постоянный вектор Нееля $\mathbf{N} = S_1 - S_2$. И поскольку мы полагаем в общем случае $S_1 \neq S_2$, коррелированно с вектором Нееля будет туннелировать нескомпенсированный спин $S = S_1 - S_2$.

Введем сферические углы $\theta_1, \theta_2, \phi_1, \phi_2$, задающие направления S_1 и S_2 . В соответствии со сказанным выше мы положим $\theta_2 = \pi - \theta_1 - \epsilon_{\theta}, \phi_2 = \pi + \phi_1 + \epsilon_{\phi}$ (при $|\epsilon_{\theta}|, |\epsilon_{\phi}| \ll 1$) (см. [3]). Выберем в качестве базиса состояния, характеризующиеся противоположными направлениями вектора Нееля (вдоль "легкой" оси \mathbf{z}) $|\downarrow\rangle, |\uparrow\rangle$. Тогда амплитуду перехода можно записать в виде интеграла по траекториям:

$$\Gamma_{\alpha\beta}(t) = \int_{\beta}^{\alpha} \mathcal{D}\{\theta_1, \theta_2, \phi_1, \phi_2\} \exp \left\{ - \int_0^t d\tau [\mathcal{L}_0(\tau) + \delta\mathcal{L}_H(\tau) + \delta\mathcal{L}_{\sigma}(\tau)] \right\}, \quad (2)$$

где $\mathcal{L}_0(\tau), \delta\mathcal{L}_H(\tau)$ и $\delta\mathcal{L}_{\sigma}(\tau)$ взяты в евклидовой форме, а $\alpha, \beta = |\downarrow\rangle, |\uparrow\rangle$.

3. Найдем экстремальную траекторию для $\theta_1(\tau)$ и $\phi_1(\tau)$ в отсутствие поля и взаимодействия с примесью (именно эта траектория и понадобится нам в дальнейшем, поскольку мы будем полагать $|\mathbf{H}_0|$ и ω_0 малыми). Лагранжиан \mathcal{L}_0 имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_0 &= JS_1 S_2 (\sin \theta_1 \sin \theta_2 \cos(\phi_1 - \phi_2) + \cos \theta_1 \cos \theta_2 + 1) + \mathcal{L}_{S_1}^0 + \mathcal{L}_{S_2}^0, \\ \mathcal{L}_S^0 &= -iS\dot{\phi} \sin \theta + K_{\parallel} S^2 \sin^2 \theta + K_{\perp} S^2 \sin^2 \theta \sin^2 \phi. \end{aligned} \quad (3)$$

В силу того, что ось y является "тяжелой", величина ϕ будет слабо флуктуировать вокруг $\phi = 0$ или $\phi = \pi$. Эти значения ϕ отвечают двум возможным траекториям -

по или против часовой стрелки, соединяющим два квазиклассических минимума. Проведя гауссово интегрирование по трем быстрым переменным (ϵ_θ , ϵ_ϕ , ϕ), мы получим в результате (опущены все члены, не дающие вклада в уравнения движения, и опущены индексы у θ и ϕ)

$$\begin{aligned}\mathcal{L}_0(\theta) &= \frac{\mathcal{M}}{2}\dot{\theta}^2 + \frac{S_2^2}{2\tilde{J}}\dot{\phi}^2 \sin^2 \theta + \tilde{K}_\parallel \sin^2 \theta, \quad \tilde{z} = \tilde{K}_\perp - \frac{2K_\perp^2 S_2^4}{\tilde{J} + 2K_\perp S_2^2}, \\ \mathcal{M} &= \frac{S^2}{2\tilde{z}} + \frac{2SS_2^3 K_\perp}{\tilde{z}(\tilde{J} + 2K_\perp S_2^2)} + \frac{S_2^2}{\tilde{J} + 2K_\perp S_2^2} + \frac{2S_2^6 K_\perp^2}{\tilde{z}(\tilde{J} + 2K_\perp S_2^2)^2},\end{aligned}\quad (4)$$

где $\tilde{K}_{\perp,\parallel} = K_{\perp,\parallel}(S_1^2 + S_2^2)$ и $\tilde{J} = JS_1 S_2$. Этот лагранжиан дает квазиклассические уравнения движения: $\dot{\phi} = 0$ и $\dot{\theta} = \Omega_0 \sin \theta$. Их решения есть:

$$\phi = \text{const}, \quad \sin \theta(\tau) = 1/\cosh(\Omega_0 \tau), \quad \Omega_0 = (2\tilde{K}_\parallel/\mathcal{M})^{1/2}. \quad (5)$$

Подставив экстремальную траекторию в \mathcal{L}_0 и проинтегрировав по τ , мы получим для евклидова действия:

$$A_0^\eta = A_0 + i\eta\pi S, \quad A_0 = 4\tilde{K}_\parallel/\Omega_0, \quad (6)$$

где $\eta = \pm$ отвечает движению между квазиклассическими минимумами по и против часовой стрелки, а $\eta\pi S$ – фаза Крамерса – Халдейна.

4. Теперь введем в рассмотрение слабое магнитное поле ($\gamma_e = 1$):

$$\delta\mathcal{L}_H = \delta\mathcal{L}_{S_1}^H + \delta\mathcal{L}_{S_2}^H, \quad \delta\mathcal{L}_S^H = -S(H_0^x \sin \theta \cos \phi + H_0^y \sin \theta \sin \phi + H_0^z \cos \theta). \quad (7)$$

Если проинтегрировать $\mathcal{L}_0 + \delta\mathcal{L}_H$ по ϵ_θ и ϵ_ϕ , положить $S_1 = S_2$ и перейти к пределу при $J \gg K_\perp$, то в результате получится известное выражение для лагранжиана Андреева – Марченко [16] без градиентного члена и члена, описывающего слабый ферромагнетизм Дзялошинского. Но сейчас мы продолжим в общем виде. Проинтегрировав (7) по всем трем быстрым переменным (сохранив только линейные по полю члены), подставим экстремальную траекторию (5) и после интегрирования по τ получим поправку к действию (6):

$$\begin{aligned}\delta A_H^\eta &= -i \frac{\eta\pi S_2^2 H_y}{\tilde{J} + 2K_\perp S_2^2} \left\{ 1 + \frac{2K_\perp^2 S_2^4}{\tilde{z}(\tilde{J} + 2K_\perp S_2^2)} \right\} - \frac{\eta\pi H_x}{\Omega_0} \left\{ \frac{K_\parallel S_2^3}{\tilde{J}} + \frac{K_\perp S_2^5 \Omega_0^2}{\tilde{z}(\tilde{J} + 2K_\perp S_2^2)^2} \right\} - \\ &- \frac{\eta\pi S}{\Omega_0} \left\{ H_x + i \frac{S\Omega_0}{2\tilde{z}} H_y \right\} - \frac{\eta\pi S\Omega_0 S_2^2}{2\tilde{z}(\tilde{J} + 2K_\perp S_2^2)} \left\{ H_x + i \frac{4K_\perp S_2}{\Omega_0} H_y \right\}.\end{aligned}\quad (8)$$

5. Поправка к лагранжиану \mathcal{L}_0 за счет сверхтонкого взаимодействия с ядерным спином может быть представлена в виде

$$\delta\mathcal{L}_\sigma = \frac{\omega_0}{2} \left(\hat{\sigma}_x \sin \theta_1 \cos \phi_1 + \hat{\sigma}_y \sin \theta_1 \sin \phi_1 + \hat{\sigma}_z \cos \theta_1 \right), \quad (9)$$

где $\hat{\sigma}_i$ ($i = x, y, z$) – матрицы Паули. Проведя те же вычисления, что и в случае магнитного поля, мы получим для поправки к действию:

$$\delta A_\sigma^\eta = \frac{\eta\pi\omega_0}{2\Omega_0} \left(\hat{\sigma}_x + i \frac{S_2^3 \Omega_0 K_\perp}{\tilde{z}(\tilde{J} + 2K_\perp S_2^2)} \hat{\sigma}_y \right) + i \frac{\eta\pi\omega_0 S}{4\tilde{z}} \hat{\sigma}_y. \quad (10)$$

6. В задаче у нас имеются два характерных масштаба времени. Ω_0^{-1} отвечает времени туннелирования сквозь барьер, второй масштаб времени определяется величиной туннельного расщепления $2\Delta_0$ (см. также [17]):

$$2\Delta_0 = \Omega_0 \sqrt{\frac{6}{\pi}} A_0 \exp\{-A_0\}; \quad (11)$$

и Δ_0^{-1} отвечает времени, в течение которого система находится в одном из минимумов. При условии, что $\Omega_0^{-1} \ll t \ll \Delta_0^{-1}$, связь между амплитудой перехода (2) и недиагональной частью эффективного гамильтониана может быть выражена в виде (мы вернулись на ось действительного времени)

$$H_{eff}^{ND} = \frac{i}{t} \left\{ \hat{\tau}_- \hat{\Gamma}_{\uparrow\downarrow}(t) + \text{н.с.} \right\}, \quad \Gamma_{\uparrow\downarrow}(t) = it\Delta_0 \sum_{\eta=\pm} \exp\{-A^\eta\}, \quad (12)$$

где $\hat{\tau}_-$ – понижающий оператор на пространстве матриц Паули. Тогда в антиферромагнитном случае (когда $S_1 = S_2$ и туннелирует вектор Нееля), сохранив лишь главные члены в поправках к действию (и положив для простоты $H_x = 0$), мы получим

$$\begin{aligned} A^\eta(0) &= A_0(0) - i\eta\psi(0) + \eta\alpha(0) \left(\hat{\sigma}_x + i\lambda(0)\hat{\sigma}_y \right), \quad \Omega_0(0) = 2S_2 \sqrt{K_{\parallel}(J + K_{\perp})}, \\ A_0(0) &= 4S_2\lambda(0), \quad \psi(0) = \frac{\pi H_y}{J + K_{\perp}}, \quad \alpha(0) = \frac{\pi\omega_0}{2\Omega_0(0)}, \quad \lambda(0) = \sqrt{K_{\parallel}/(J + K_{\perp})}. \end{aligned} \quad (13)$$

Подстановка (13) в (12) даст недиагональную (то есть отвечающую туннелированию) часть эффективного гамильтониана:

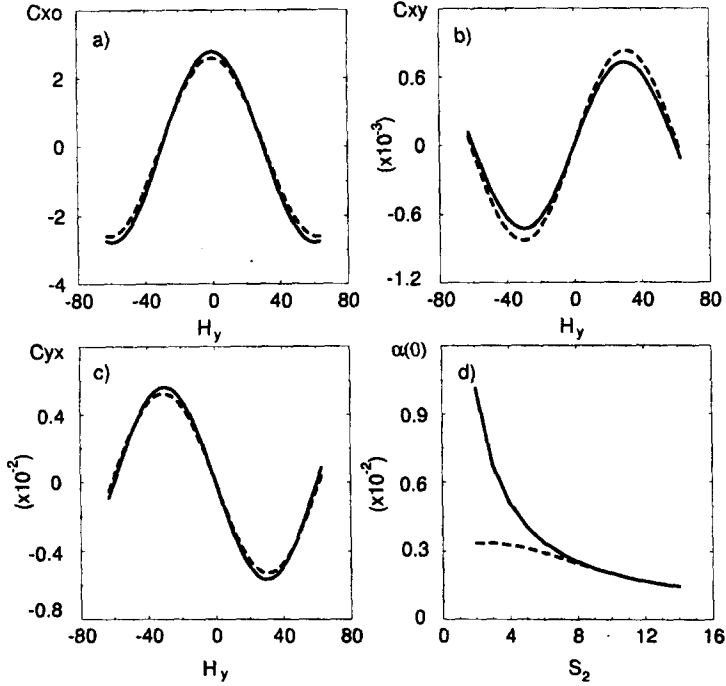
$$H_{eff}^{ND}(0) = 2\Delta_0(0)\hat{\tau}_- \cos \left[\psi(0) + \alpha(0) \left(i\hat{\sigma}_x - \lambda(0)\hat{\sigma}_y \right) \right] + \text{н.с.}, \quad (14)$$

(Мы не будем приводить здесь диагональную (статическую) часть, общий способ вычисления которой изложен в [14].) Заметим, что в случае $S_1 \gg S_2$ получится эффективный гамильтониан, описывающий туннелирование намагниченности в ферромагнитной грануле [14].

В случае же произвольного S (ферримагнетик) туннелировать будет вектор Нееля вместе с избыточным спином. В пределе $\tilde{J} \gg 2K_{\perp}S_2^2$ эффективный гамильтониан имеет вид (мы по прежнему полагаем $H_x = 0$)

$$\begin{aligned} H_{eff}^{ND}(S) &= 2\Delta_0(S)\hat{\tau}_- \cos \left[\pi S - \psi(S) - \alpha(S) \left(i\hat{\sigma}_x - \lambda(S)\hat{\sigma}_y \right) \right] + \text{н.с.}, \quad (15) \\ A_0(S) &= \sqrt{4 \frac{K_{\parallel}}{K_{\perp}} \left(S^2 + S_2^2 \frac{2\tilde{K}_{\perp}}{\tilde{J}} + SS_2^3 \frac{4K_{\perp}}{\tilde{J}} \right)}, \quad \lambda(S) = \frac{\Omega_0(S)}{\tilde{K}_{\perp}} \left(\frac{S}{2} + \frac{K_{\perp}S_2^3}{\tilde{J}} \right), \\ \psi(S) &= \frac{\pi A_0(S)H_y}{2\Omega_0(S)}, \quad \alpha(S) = \frac{\pi\omega_0}{2\Omega_0(S)}, \quad \Omega_0(S) = \sqrt{\frac{4\tilde{K}_{\parallel}\tilde{K}_{\perp}\tilde{J}}{S^2\tilde{J} + 2\tilde{K}_{\perp}S_2^2 + 4SS_2^3K_{\perp}}}. \end{aligned}$$

Очевидным образом возникает критерий на величину избыточного спина, по которому происходит переключение режимов с ферромагнитного на антиферромагнитный: $S \gg S_2(2\tilde{K}_{\perp}/(\tilde{J} + 2K_{\perp}S_2^2))^{1/2}$ – ферромагнитный режим; $S \ll S_2(2\tilde{K}_{\perp}/(\tilde{J} + 2K_{\perp}S_2^2))^{1/2}$ – антиферромагнитный режим.



а) – с). Численные коэффициенты C_{ij} (штриховые кривые) в сравнении с аналитическими выражениями из (16) (сплошные линии) как функции магнитного поля H_y при $J = 40, K_{\perp} = 20, K_{\parallel} = 1, \omega_0 = 0.2, S_1 = S_2 = 10, \sigma = 1/2$. д). Численная (штриховая кривая) и аналитическая (16) (сплошная линия) зависимости коэффициента α от величины спина подрешетки при $J = 40, K_{\perp} = 20, K_{\parallel} = 1, \omega_0 = 0.2, \sigma = 1/2$

7. Для проверки полученных формул мы воспользуемся методом точной диагонализации в применении к исходному гамильтониану (1) с $H_x = 0$. За неимением места результаты вычислений здесь будут представлены только для антиферромагнитного случая ($S_1 = S_2$). Процедура точной диагонализации подробно описана в [14] и поэтому мы лишь определим величины, подлежащие анализу. Разложив (14) в ряд до линейных по ω_0 членов, мы получим:

$$H_{eff}^{ND} \approx 2\Delta_0(0) \left(\cos \psi(0) \cdot \hat{\tau}_x \hat{\sigma}_0 - \alpha(0) \sin \psi \cdot \hat{\tau}_y \hat{\sigma}_x + \alpha(0) \lambda(0) \sin \psi \cdot \hat{\tau}_x \hat{\sigma}_y \right). \quad (16)$$

Динамическая часть эффективного гамильтониана, полученного точной диагонализацией, имеет следующий вид:

$$H_{ED}^{ND} = C_{x0} \cdot \hat{\tau}_x \hat{\sigma}_0 + C_{xy} \cdot \hat{\tau}_x \hat{\sigma}_y + C_{yx} \cdot \hat{\tau}_y \hat{\sigma}_x, \quad (17)$$

где именно эти коэффициенты C_{ij} и изображены на рисунках а, б и с (штриховыми линиями) вместе с соответствующими аналитическими величинами из (16) (сплошные линии) как функции приложенного магнитного поля, при $J = 40, K_{\perp} = 20, K_{\parallel} = 1, \omega_0 = 0.2, S_1 = S_2 = 10, \sigma = 1/2$. На рисунке д отложен коэффициент $\alpha(0)$, развернутый из C_{yx} (штриховая линия), вместе со своим аналитическим аналогом из (13) (сплошная линия) как функция спина подрешетки при

$J = 60, K_{\perp} = 20, K_{\parallel} = 1, \omega_0 = 0.2, \sigma = 1/2$. Именно этот коэффициент описывает взаимодействие со спиновым термостатом и, соответственно, представляет наибольший интерес в настоящей работе. Как видно из всех рисунков, совпадение аналитики с компьютерным расчетом вполне удовлетворительное. Расхождение двух величин для α в области малых S_2 очевидным образом объясняется тем, что при таких величинах спина квазиклассическое описание еще не справедливо.

8. Настоящая работа не имеет целью проведение *детального* анализа всех факторов, оказывающих влияние на процесс туннелирования, но некоторые очевидные качественные выводы можно сделать даже без практических расчетов (с полученными гамильтонианами) по спиновой динамике исследуемых систем: (i) эффект туннелирования в антиферромагнитных системах проявляется действительно сильнее, чем в ферромагнитных, поскольку $A_0(AF\bar{M}) < A_0(FM)$; (ii) наличие избыточного спина оказывает сильное влияние на процесс туннелирования хотя бы по той причине, что перенормирует A_0 и Ω_0 , которые вместе определяют величину туннельного расщепления и частоту туннелирования; (iii) взаимодействие со спинами окружения чрезвычайно важно вследствие того, что может радикально поменять картину туннелирования, вплоть до полного его подавления, как в случае туннелирования полупрочного избыточного спина или полупрочного "гигантского спина".

Автор благодарен Н.Прокофьеву, Ф.Стампу и Б.Барбаре за многочисленные полезные обсуждения, а также лаборатории Л.Нееля (Гренобль, Франция), где была проделана часть работы, за гостеприимство. Работа была выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 97-02-16548).

-
1. J.L. Van Hammen and A.Suto, *Europhys. Lett.* **1**, 481 (1986); E.M. Chudnovsky and L. Gunter, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 661 (1988); P.C.E.Stamp, E.M.Chudnovsky, and B.Barbara, *Int. J. Mod. Phys.* **6**, 1355 (1992).
 2. *Quantum Tunneling of Magnetization*, QTM'94, Eds. by L.Gunter and B.Barbara, (1995).
 3. B.Barbara and E.M.Chudnovsky, *Phys. Lett. A* **145**, 205 (1990); E.M.Chudnovsky, in Ref.[2], p.76.
 4. I.V.Krive and O.B.Zaslavskii, *J. Phys.: Cond. Matter.* **2**, 9457 (1990).
 5. E.N.Bogachek and I.V.Krive, *Phys. Rev.* **B46**, 14559 (1992).
 6. G.Levine and J.Howard, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4142 (1995).
 7. B.A.Ivanov and A.K.Kolezhuk, *cond-mat/9706292*.
 8. S.E.Barnes, R.Ballou, B.Barbara, and J.Strelen, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 289 (1997).
 9. A.Chiolero and D.Loss, *cond-mat/9708042*.
 10. W.Wernsdorfer, K.Hasselbach, E.Bonet Ortonzo, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4014 (1997); J.Tejada, X.X.Zhang, E. del Barco, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1754 (1997).
 11. P.C.E.Stamp, *Nature* **359**, 365 (1992); *Physica B* **197**, 133 (1994).
 12. D.D.Awshalom, J.F.Smyth, G.Grinstein, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3092 (1992).
 13. N.V.Prokof'ev and P.C.E.Stamp, *J. Phys. CM Lett.* **5**, L663 (1993); N.V.Prokof'ev and P.C.E.Stamp, *J. Low Temp. Phys.* **104**, 143 (1996); A.Garg, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 4249 (1993).
 14. I.S.Tupitsyn, N.V.Prokof'ev, and P.C.E.Stamp, *Int. J. Mod. Phys. B* **11**, 2901 (1997).
 15. E.Fradkin, *Field Theories of Condensed Matter Systems*, *Frontiers in physics*, No.82, 1991.
 16. А.Ф. Андреев, В.И. Марченко, *УФН* **130**, 39 (1980).
 17. С.Н.Бурмистров, Л.Б.Дубовский, *Препринт ИАЭ, ИАЭ-3881/1* (1984).