

KVANTNO TUNELIRANJE MAGNETIZACIJE

Krešo Zadro

Fizički odsjek
Prirodoslovno-matematički fakultet
Zagreb

Uvod

U klasičnoj fizici određeni događaji se dogode ili ne, i neovisni su o načinu kako ih promatramo. U kvantnoj fizici svi događaji (uključujući i klasično zabranjene) dogode se s nekom vjerojatnošću. Pokazano je da kvantni procesi suvereno vladaju na razini atomske fizike i niže. Uobičajen primjer događaja koji je samo kvantno opisiv je tuneliranje. Tuneliranje na makroskopskoj razini teorijski je moguće, ali je vjerojatnost jako mala. Posljednjih nekoliko godina veliku pažnju privlači tuneliranje magnetizacije neke čestice između makroskopskih ravnotežnih stanja. Tako se kvantnim tuneliranjem magnetizacije opisuju nedavno primijećeni neobični skokovi u krivulji magnetske histereze.

Pokušajmo prvo razjasniti pojedinačno pojmove navedene u samom naslovu: tuneliranje i magnetizacija. Zatim ćemo pogledati eksperimentalne naznake tuneliranja magnetizacije Mn_{12} acetata

Kvantno tuneliranje

Tuneliranje je pojava prolaska sustava iz jednog dozvoljenog stanja u drugo klasično zabranjenim putem. Što znači klasično zabranjenim putem? Zamislimo jednostavan pokus u koje kuglica, gibajući se stalnom brzinom i bez trenja po horizontalnoj podlozi, nailazi na izbočinu. Ako je brzina odnosno kinetička energija kuglice dovoljno velika kuglica će prijeći izbočinu. Što znači dovoljno velika? U igri imamo kinetičku i potencijalnu energiju pa zakon o očuvanju energije kaže da se povećanjem potencijalne energije tj. podizanjem uz izbočinu kinetička energija smanjuje. Dakle, da bi kuglica došla do vrha i prešla izbočinu, početna kinetička energija mora biti veća ili barem jednaka potencijalnoj energiji na vrhu. Ako ne, kuglica će se popeti do neke visine i skliznuti nazad. Gledano klasično ovako očekivanje je u redu. Međutim, kvantno-mehanički, i uz manju kinetičku energiju od potencijalne postoji vjerojatnost da se kuglica nađe s druge strane izbočine. U stvarnijem pokusu izbočina predstavlja potencijalni bedem odnosno područje u kojem na česticu djeluje odbojna sila. Vjerojatnost prolaska kroz bedem (tuneliranja) je veća ako je razlika visine bedema (potencijalne energije) i energije čestice manja te ako je bedem uži. Pojava prolaska kroz energijski zabranjeno područje potvrđena je u svijetu atoma i niže. Kvantna teorija kaže

da je pojava moguća na svim razinama. I na makroskopskoj. Automobilom možemo proći kroz planinu ne vozeći preko nje (iako nema tunela). Ali je vjerojatnost kvantnog tuneliranja velikih predmeta jako mala.

Magnetizacija

Podimo od davno uočenih pojava. Oko vodiča kojim teče struja stvara se magnetsko polje $\vec{B}$. Postoje trajni magneti koji se očituju kao dipoli i koji također stvaraju magnetsko polje. Silnice magnetskog polja male kružne strujne petlje izgledaju kao silnice magnetskog polja malog dipola.

Magnetski dipolni moment pridružen strujnoj petlji jednak je umnošku struje I i površine petlje A . Ako elektron naboja e i mase m_e kruži po stazi polumjera r brzinom v magnetski moment je jednak

$$\mu = Ir^2\pi = \frac{ev}{2\pi r} r^2\pi = \frac{evr}{2}$$

S druge strane kutna količina gibanja L elektrona u istoj stazi dana je izrazom

$$L = rm_e v$$

Dakle, uzimajući u razmatranje i smjer, magnetski moment možemo napisati

$$\vec{\mu} = -\frac{e}{2m_e} \vec{L}$$

U Bohrovom modelu atoma kutna količina gibanja je kvantizirana u jedinicama $h/2\pi$ gdje je h Planckova konstanta. Dakle, najniža vrijednost magnetskog momenta različita od nule je:

$$\mu_B = \frac{eh}{4\pi m_e} \quad (\text{Bohrov magneton})$$

Kvantno-mehanički, da bi se opisalo stanje elektrona u atomu potrebni su kvantni brojevi: n , l , m i s . Vrijednost kutne količine gibanja dana je pomoću orbitalnog kvantnog broja l :

$$L^2 = l(l+1) \frac{h^2}{4\pi^2}$$

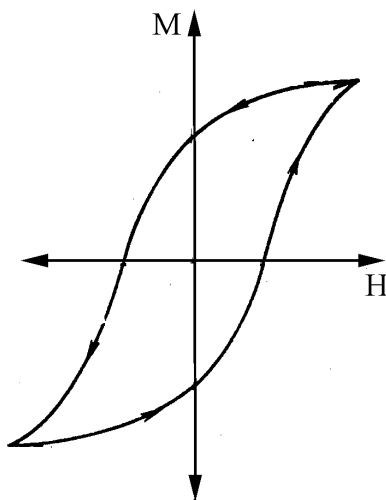
Projekcija kutne količine gibanja na neku os opisana je magnetskim brojem m_l ($= -l, -(l-1), \dots, 0, \dots, (l-1), l$). Spinski kvantni broj elektrona jednak je $s=1/2$, a $m_s = \pm 1/2$. Spin je svojstvo elektrona koje u jednostavnoj slici gibanja možemo opisati kao neprekidnu vrtnju oko svoje vlastite osi. Dakle elektron posjeduje vlastitu kutnu količinu gibanja koja je neovisna o njegovu gibanju po stazi. Mjerenja pokazuju da je spinska kutna količina gibanja jednaka $h/4\pi$. Toj kutnoj količini gibanja pridružen je odgovarajući magnetski dipolni moment suprotnog smjera.

Ukupna kutna količina gibanja $\vec{J}$ dobije se zbrajanjem orbitalnog $\vec{L}$ i spinskog $\vec{S}$ doprinosa.

Magnetska svojstva pojedinih materijala određena su značajkama atoma odnosno stanjima elektrona i njihovim međudjelovanjem. U pokusima opažamo više vrsta magnetskog ponašanja. Obično mjerimo magnetski moment uzorka u ovisnosti o magnetskom polju i/ili temperaturi. Magnetizacijom M nazivamo ukupni magnetski moment po jedinici volumena odnosno u jednostavnoj slici magnetizacija je umnožak broja usmjerenih magnetskih dipola po jedinici volumena i iznosa magnetskog momenta svakog dipola. A zašto su dipoli usmjereni ovisi o magnetskom svojstvu materijala.

Kod dijamagneta vanjsko magnetsko polje inducira magnetske dipolne momente u smjeru suprotnom samom polju, dok kod paramagneta vanjsko polje usmjerava trajne dipole koji su bez polja nasumično usmjereni u svim smjerovima.

U feromagnetima postoji magnetsko uređenje i bez prisustva vanjskog magnetskog polja. Uzrok usmjeravanja susjednih magnetskih dipola je u međudjelovanju izmjene. A koji smjer dipoli izabiru, ovisi o simetriji okolice pojedinog atoma odnosno o strukturi materijala. U željezu npr. smjerovi bridova kubične rešetke su osi najlakše magnetizacije. Da bi se dipoli zajednički zakrenuli iz jednog smjera najlakše magnetizacije u drugi moraju proći nizom manje povoljnih usmjerenja. Treba uočiti da se svi feromagnetni ne pojavljuju kao trajni magneti, tj. da bez vanjskog polja ne pokazuju ukupni magnetski moment. Prividno nemagnetično željezo podijeljeno je u više područja magnetizacije (domena). Unutar jednog područja svi dipoli su usmjereni u jednom smjeru, ali su smjerovi različitih područja različiti (energijski je povoljnije). Ako ovakav uzorak podvrgnemo vanjskom magnetskom polju dolazi do složenog procesa usmjeravanja u smjeru polja. Na slici je prikazana petlja magnetske histereze, tj. ovisnost magnetizacije o polju tijekom jednog kružnog procesa.



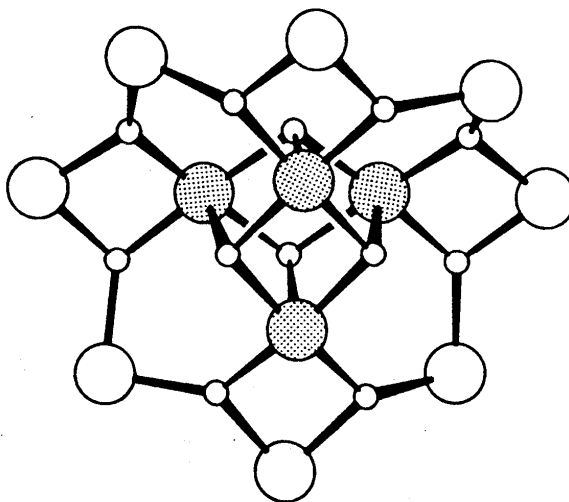
Slika 1. *Petlja magnetske histereze*

Molekule velikog spina

Pedesetak godina nakon uočavanja i proučavanja kvantnog tuneliranja čestica počelo je proučavanje kvantnog tuneliranja magnetizacije između makroskopskih ravnotežnih stanja. Prvo se početkom devedesetih pojavu pokušalo uočiti na malim česticama nanometarskih dimenzija, dobivenih usitnjavanjem. Međutim zbog odstupanja u veličini i obliku čestica, mikroskopski kvantni učinci nisu se mogli očitovati na makroskopskoj razini. Nakon toga se krenulo 'odozdo', od velikih molekula i nakupina dobivenih kemijskom sintezom. Njihova prednost je identičnost čestica.

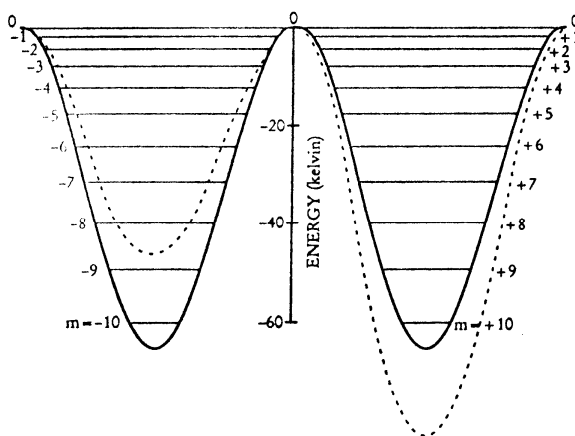
Tako je pažnju privukao molekularni magnet Mn_{12} acetat. Mn_{12} acetat je prvi put sintetiziran (T.Lis) u Wroclavu 1980, a istraživanje njegovih fizičkih svojstava pojačano

je posljednjih godina. Kemijska formula kristala je $[\text{Mn}_{12}\text{O}_{12}(\text{CH}_3\text{COO})_{16}(\text{H}_2\text{O})_4] \cdot 2\text{CH}_3\text{COOH} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$. Molekule se slažu u tetragonsku rešetku.



Slika 2. Struktura Mn_{12} molekule. Prikazani su samo ioni Mn^{4+} (veliki osjenčeni), Mn^{3+} (veliki) te kisik (mali)

Svaka molekula je načinjena od 12 Mn iona koji međudjeluju preko kisika. Središnja 4 Mn^{4+} iona imaju spin $S=3/2$ i čine feromagnetsku nakupinu ukupnog spina $S=6$. Ostalih osam Mn^{3+} iona imaju spin $S=2$ i čine drugu feromagnetsku nakupinu ukupnog spina $S=16$. Zbog suprotnog usmjerenja (antiferomagnetskog međudjelovanja) ovih dviju nakupina ukupni spin molekule je $S=10$. Sva međudjelovanja su tako jaka da se molekula ponaša kao jedinstvena čestica spina $S=10$. Spin $S=10$ je vrlo velik za osnovno stanje molekule. Inače, što je veći spin manja su ograničenja u orijentacijskoj kvantizaciji kutne količine gibanja. U klasičnoj granici spin se može usmjeriti u bilo kojem smjeru. Dakle proučavanje ove molekule moglo bi dati odgovor na pitanje prijelaza između kvantnog i klasičnog opisa stvarnosti.



Slika 3. Energijske razine za različite smjerove spina molekule Mn_{12} acetata

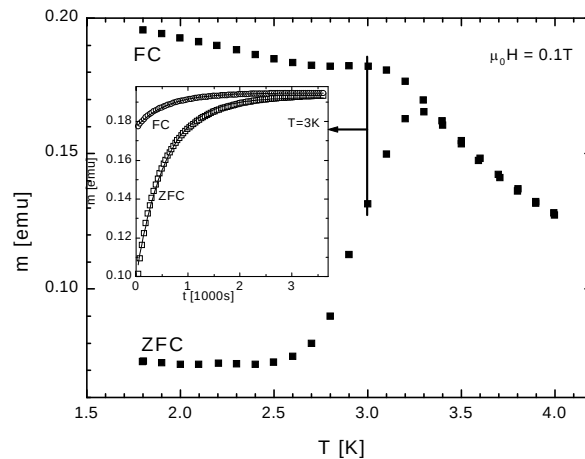
Kristal Mn_{12} je jako anizotropan, magnetski dipoli preferiraju biti usmjereni duž osi anizotropije. Projekcija spina $S=10$ na os anizotropije može poprimiti samo određene vrijednosti: $m = -10, -9, \dots, -1, 0, 1, \dots, 9, 10$. Dakle, bez vanjskog polja, razine minimalne energije pripadaju suprotnim usmjerenjima spina duž osi anizotropije, $m = -10$ i 10 . Bedem između ovih stanja je oko 60 K a razmak između razina je oko 12 K pri dnu i oko 0,6 K na vrhu.

Usporena magnetska relaksacija

Mn_{12} acetat se očituje kao superparamagnet. Na visokim temperaturama magnetski moment brzo i lagano mijenja smjer tako da je vremenski prosjek magnetizacije bez vanjskog polja jednak nuli. U vanjskom polju magnetizacija opada povećanjem temperature kao kod paramagneta. Na niskim temperaturama bedem postaje prepreka promjeni smjera. Vrijeme magnetske relaksacije, koje inače dobro slijedi Arrheniusov zakon,

$$\tau = \tau_0 e^{\frac{U}{k_B T}}, \quad \tau_0 = 2,1 \times 10^{-7} \text{ s}, \quad U - \text{visina bedema},$$

postaje sve veće. Na 2 K ono iznosi nekoliko mjeseci.



Slika 4. Magnetski moment u ovisnosti o temperaturi

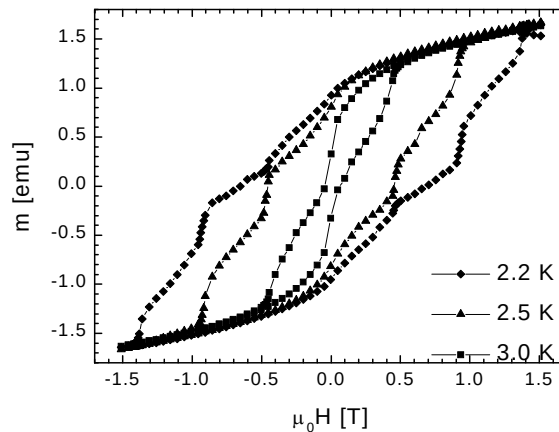
Umetak: magnetski moment u ovisnosti o vremenu

Magnetski moment uzorka Mn_{12} acetata u ovisnosti o temperaturi prikazan je na slici 4. Prikazane dvije krivulje koje odgovaraju različitim postupcima mjerenja. Tijekom jednog mjerenja uzorak je ohlađen bez prisustva vanjskog magnetskog polja a zatim je nakon uključivanja određenog polja u grijanju mjeren moment u ovisnosti o temperaturi (ZFC krivulja). Drugo mjerenje je načinjeno također u grijanju ali nakon što je uzorak ohlađen u istom polju (FC). Dvije krivulje se razdvajaju na određenoj temperaturi koju možemo nazvati temperatura kočenja odnosno zamrzavanja. Na toj temperaturi vrijeme jednog mjerenja postaje usporedivo s vremenom magnetske relaksacije. Ispod te

temperature vrijeme magnetske relaksacije je veće i mi mjerimo neku vrijednost na putu prema ravnotežnom stanju. Dobivena vrijednost jako ovisi o ‘povijesti’ uzorka, odnosno je li zamrznut u uređenijem stanju ili ne. Kad bismo dovoljno dugo mjerili dobili bismo istu vrijednost blisku ravnotežnoj vrijednosti za dano polje i temperaturu. To pokazuje umetak na slici 4. Krivulje FC i ZFC bi se preklopile..

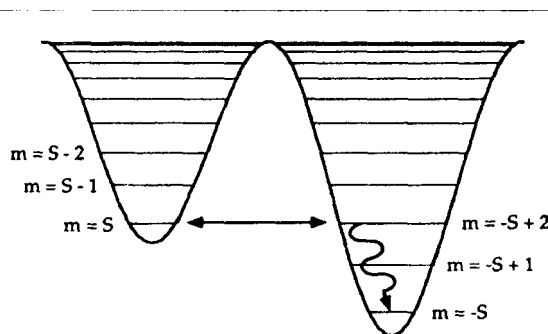
Kvantna magnetska histereza

Mjerenje magnetskog momenta u ovisnosti o polju na temperaturi ispod temperature zamrzavanja, pokazuje histerezu (slika 5). Nadalje, uočavaju se skokovi prilikom podizanja polja ali ne i prilikom spuštanja polja prema nuli. Skokovi se događaju samo na određenim vrijednostima polja (svakih približno 0,46 T). Snižavanjem temperature opažaju se novi skokovi za više vrijednosti polja. Kao da se magnetska relaksacija ubrzava na poljima u blizini skoka.



Slika 5. Krivulje magnetske histereze Mn_{12} acetata na različitim temperaturama

Skokovi se objašnjavaju rezonantnim kvantnim tuneliranjem između stanja iste energije. Kako se podiže magnetsko polje spušta se jedna strana bedema a druga podiže (slika 6.) Za vrijednosti polja pri kojima se podudaraju energije stanja s lijeve i desne strane dolazi do rezonantnog tuneliranja. Istovremeno se podudaraju sve preostale razine na lijevoj strani s odgovarajućima na desnoj, tako da dolazi do rezonantnog tuneliranja i iz osnovnog stanja i iz toplinski pobuđenih. Iz ovih pobuđenih tuneliranje je i brže jer je uži bedem. Kažemo da se radi o toplinski potpomognutom rezonantnom tuneliranju. Za molekule spina $S=10$ trebalo bi se na krivulji histereze pojaviti 21 skok (posljednji bi odgovarao nestanku bedema). Međutim, za veće vrijednosti magnetskog polja bedem je sve niži i toplinska relaksacija je sve brža, pa je za uočavanje tih skokova potrebna niža temperatura. Procjena je da bi 19 skok trebao biti vidljiv oko 10 mK i 8.74T.



Slika 6. Dijagram modela rezonantnog tuneliranja. Nakon tuneliranja iz stanja $m=S$ u pobuđeno stanje $m=-S+n$ slijedi brzo padanje u osnovno stanje.

Zaključak

Gore opisana kvantna histereza Mn_{12} acetata s ekvidistantnim skokovima, prvi put je objavljena 1996 u literaturi (1) i (2). Nakon toga je potvrđena više puta (i u Zagrebu!). Skokovi u histerezi su objašnjeni kao kvantno-mehanički učinci na makroskopskoj razini u magnetizaciji, odnosno kao termički potpomognuto rezonantno tuneliranje magnetizacije između različitih kvantnih spinskih stanja. Sve je vidljivo u uzorku makroskopske veličine zbog istovremenog tuneliranja u velikom broju identičnih molekula velikog spina. A zašto dolazi do rezonantnog tuneliranja? Teorija je predviđjala rezonantno tuneliranje u jakom transversalnom magnetskom polju. Međutim, u ovim pokusima nema tog polja! Još mnoga pitanja čekaju teorijski odgovor i potvrdu u pokusu.

Literatura

1. J.R.Friedman et al, Phys.Rev.Lett.,76 (1996) 3830
2. L.Thomas et al, Nature, 383 (1996) 145
3. E.M.Chudnovsky, Science, 274 (1996) 938
4. P.C.E.Stamp, Nature, 383 (1996) 125
5. B.Schwarzschild, Physics Today, January 1997
6. D.Pajić, Diplomski rad, Fizički odsjek PMF-a, Zagreb, 1999