Физика низких температур, 1998, т. 24, № 10, с. 958–964

Описание упорядочения температурной зависимости восприимчивости и магнитострикции одноподрешеточной системы спинов с $S = 1$ и большим биквадратичным обменом

В. М. Калита, А. Ф. Лозенко

Институт физики НАН Украины, Украина, 252650, г. Киев, пр. Науки, 46
E-mail: ryabch@labmag.ip.kiev.ua

Статья поступила в редакцию 9 января 1997 г., после переработки 10 мая 1998 г.

Рассмотрена модель магнитного упорядочения одноподрешеточной системы спинов с $S = 1$ и большим биквадратичным обменным взаимодействием, энергия которого по порядку величины равна энергии билинейного обменного взаимодействия. В микроскопическом приближении получено выражение для свободной энергии, определены и проанализированы фазовые состояния. Потенциал Ландау представлен в виде разложения в степенной ряд модельной микроскопической свободной энергии. С его помощью описаны особенности температурных зависимостей магнитной восприимчивости и магнитоупругих деформаций.

Розглянуто модель магнітного упорядкування однопідграткової системи спінів з $S = 1$ і великою біквадратичною обмінною взаємодією, енергія якої за порядком величини дорівнює енергії білінійної обмінної взаємодії. В мікроскопічному наближенні одержано вираз для вільної енергії, знайдено і проаналізовано фазові стани. Потенціал Ландау представлено у вигляді розкладання у степеневий ряд модельної мікроскопічної вільної енергії. За допомогою нього було описано особливості температурних залежностей магнітної сприйнятливості та магнітопружних деформацій.

PACS: **76.60.–k**

Как известно, обычное гейзенберговское билинейное по спинам обменное взаимодействие в ряде систем должно быть дополнено более сложным, в том числе биквадратичным по спинам обменным взаимодействием (БО). В ряде случаев (см., например, [1]) есть основания предполагать, что величина БО будет не малой, а сравнимой, либо даже бóльшей билинейного обмена. Биквадратичное по спинам обменное взаимодействие может качественно изменить свойства магнетиков. Самым главным свойством системы с большим БО является возможность существования так называемой квадрупольной фазы (КФ) [2], описываемой тензорным (2-го ранга) параметром порядка, намагниченность которой равна нулю. О других проявлениях БО можно узнать из [3].

Описание термодинамических свойств одноподрешеточного изотропного магнетика с ферромагнитным билинейным обменом и БО проводилось неоднократно (см., например, [3–7]). В работе [8] рассмотрен более общий случай, когда кроме БО учитывались трех- и четырехспиновые обменные взаимодействия. Тем не менее задача не является полностью ясной. Так, например, анализируемые в [8] различные возможные конфигурации спиновых квадрупольных состояний при $T = 0$ были ошибочно названы доменами. Расчеты, выполненные в [4,7], справедливы для равновесных состояний и не могут быть использованы для вычисления неравновесной свободной энергии, задаваемой в виде функции параметров порядка. Правильная процедура вычисления неравновесной свободной энергии и потенциала Ландау описана в [9–11], а применительно к рассматриваемой задаче в [6,8], однако некоторые решения, анализируемые в этих работах, неустойчивы. В этом легко убедиться, введя малое возмущение, содержащее, например, zz-компоненту оператора спинового квадрупольного момента. Такая неустойчивость не присуща самой системе, а является следствием приближений, используемых в этих работах. Метод среднего поля для системы спинов с БО предусматривает наличие как векторного магнитного, так и тензорного квадрупольного средних полей. Поскольку система изотропна и фазовый переход между ферромагнитным и квадрупольным состоянием реализуется в виде перехода первого рода, складывается впечатление, что направления полей, а соответственно ориентация параметров порядка для этих состояний, могут быть произвольны. Однако взаимосвязь направлений спонтанного понижения симметрии для различных состояний требует внимания.

Действительно, в [2] показано, что КФ обладает магнитной восприимчивостью, т.е. в квадрупольном состоянии под действием внешнего магнитного поля возникает намагниченность, направление которой задается полем. Но тогда это поле задаст и определенную ориентацию для квадрупольного параметра порядка, который ранее был ориентационно вырожден, поскольку средняя намагниченность задает теперь ось квантования и направления главных осей квадрупольного момента перестают быть инвариантными относительно этой оси, хотя и не определяются полностью заданием лишь этой оси. Таким образом, если потребовать, чтобы намагниченность квадрупольной фазы во внешнем поле и спонтанная намагниченность ферромагнитной фазы (ФФ) имели одинаковые направления, т.е. были ориентированы одним внешним полем, задающим квазисредние для ФФ, то получим, что ориентация квадрупольного момента в КФ и ориентация магнитного момента в ФФ взаимосвязаны.

Среднее тензорное поле, которое учитывают при формировании КФ, не содержит векторного поля, записывается через компоненты квадрупольного параметра порядка и поэтому не может в полной мере определить ориентацию намагниченности в ФФ. Как будет видно из дальнейшего, именно корректная интерпретация возникающей взаимосвязи указанных полей дает возможность ясно описать задачу. Данные соображения особенно актуальны для нашего рассмотрения, поскольку мы анализируем возможности, когда в системе в различных условиях могут существовать КФ и ФФ, переходя друг в друга.

В настоящей работе рассмотрена простейшая одноподрешеточная система спинов с $S = 1$ с изотропными билинейным и БО. Проведен термодинамический анализ возможных типов, включая КФ и ФФ, спинового упорядочения, и проанализированы температурные зависимости магнитной восприимчивости и деформаций решетки. Поскольку для процедуры расчета магнитной восприимчивости и магнитострикции необходимо введение магнитного поля и при этом рассмотрено приближение среднего поля, использован подход, позволяющий корректно учесть взаимную ориентацию параметров порядка в КФ и ФФ, возникающую в результате действия внешнего поля.

Гамильтониан

Рассмотрим спиновую систему с гамильтонианом

$$H = J \sum_{\mathbf{fg}} \mathbf{S_f}\, \mathbf{S_g} + B \sum_{\mathbf{fg}} (\mathbf{S_f}\, \mathbf{S_g})^2 , \qquad (1)$$

где $\mathbf{S_f}$, $\mathbf{S_g}$ — операторы спина; $\mathbf{f}$, $\mathbf{g}$ — векторы, задающие позиции спинов с $S = 1$; J, B — константы билинейного и БО, причем $J < 0$, $B < 0$. Отрицательные значения констант J, B обеспечивают устойчивость одноподрешеточной магнитной структуры.

Обозначая через $Q_{\alpha\beta}$ компоненты оператора квадрупольного момента $Q_{\alpha\beta} = \frac{1}{2}\, (S_\alpha S_\beta + S_\beta S_\alpha)$, гамильтониан (1) запишем в виде

$$H = (J - \tfrac{1}{2} B) \sum_{\mathbf{f,g}} (\mathbf{S_f}\, \mathbf{S_g}) + \sum_{\alpha,\beta} B_{\alpha\beta} \sum_{\mathbf{f,g}} Q_{\mathbf{f}\alpha\beta}\, Q_{\mathbf{g}\alpha\beta} , \qquad (2)$$

где $\alpha, \beta = x, y, z$, а коэффициенты $B_{\alpha\beta}$ определяются из следующих условий: если $\alpha \neq \beta$, то $B_{\alpha\beta} = 2B$, если $\alpha = \beta$, то $B_{\alpha\beta} = B$.

В работах [12,13] при описании спиновых систем с $S = 1$ для спина введена собственная система координат, в которой

$$\langle \psi_\mathbf{f}\, S_{x\mathbf{f}}\, \psi_\mathbf{f} \rangle = \langle \psi_\mathbf{f}\, S_{y\mathbf{f}}\, \psi_\mathbf{f} \rangle = \langle \psi_\mathbf{f}\, Q_{\mathbf{f}xy} \psi_\mathbf{f} \rangle = 0 \ , \qquad (3)$$

где $|\psi_\mathbf{f}\rangle$ обозначает функцию основного состояния $\mathbf{f}$-го спина, а x, y, z — оси в собственной системе координат. В намагниченном состоянии, когда средние значения $\overline{S}_z = \langle \psi_\mathbf{f}\, S_{z\mathbf{f}}\, \psi_\mathbf{f} \rangle$ не равны нулю, функция $|\psi_\mathbf{f}\rangle$ основного состояния определена однозначно и имеет вид [12,13]

$$|\psi_\mathbf{f}\rangle = \cos\varphi\, |1\rangle + \sin\varphi\, |-1\rangle \ , \qquad (4)$$

где $|1\rangle$ и $|-1\rangle$ — собственные функции оператора S_z . Этот вид функции позволяет описать обсуждаемые во введении ферромагнитное и квадрупольное состояния. Во внешнем магнитном поле $h \parallel z$ ферромагнитному состоянию отвечает функция (4) с $\varphi = 0$, для которой $\overline{S}_z = 1$. Намагниченность квадрупольного состояния в поле равна

$$\overline{S}_z = \frac{h}{2(J - B)} . \qquad (5)$$

При $h \to 0$ квадрупольному состоянию отвечает функция (4) с $\varphi = \pi/4$.

Восприимчивость квадрупольного состояния не равна нулю и записывается в виде

$$\chi^{-1} = 2(J - B) . \qquad (6)$$

Поведение намагниченности и восприимчивости в квадрупольном спиновом состоянии такое же, как и для изотропного антиферромагнетика [2].

Свободная энергия

Описание системы, представленной гамильтонианом (1), при конечных температурах проведем, используя систему координат, которая задана соотношениями (3).

Однако следует иметь в виду, что статистические вычисления неравновесной свободной энергии через статистическую сумму Гиббса, выполненные в [3,4,7], основаны на теореме об экстремальности приближенной равновесной свободной энергии [14], которая является функцией внешних параметров. Замена внешних параметров, например, внешнего магнитного поля обменным, осуществляемая в этих работах, не обоснована, так как обменное поле является функцией внутреннего параметра. Поэтому потенциал Ландау при таких расчетах содержит инварианты 4-ой степени от внешнего магнитного поля [15,16], что не согласуется с термодинамической теорией фазовых переходов [17]. Поэтому, как и в [6,8], свободную энергию будем вычислять в соответствии с термодинамическим определением свободной энергии $F = E - T\sigma$, где E и σ — энергия и энтропия, функции параметров порядка. Этот подход к вычислению неравновесной свободной энергии достаточно обоснован в [9–11], и его применение в [6,8] правомерно.

Собственные волновые функции спина в методе среднего поля системы (1), удовлетворяющие (3), запишутся в виде [8,12,13]

$$|\psi_1\rangle = \cos\varphi\,|1\rangle + \sin\varphi\,|-1\rangle , \quad |\psi_2\rangle = |0\rangle ,$$
$$|\psi_3\rangle = -\sin\varphi\,|1\rangle + \cos\varphi\,|-1\rangle . \qquad (7)$$

В базисе этих функций отличными от нуля будут лишь z-компоненты спина, а квадрупольный момент диагонален. Поэтому свободная энергия будет функцией термодинамических параметров:

$$M = \frac{1}{N}\sum_{\mathbf{f}} \overline{S}_{z\mathbf{f}} ; \quad d_{zz} = \frac{1}{N}\sum_{\mathbf{f}} \overline{Q}_{\mathbf{f}zz} ;$$
$$d_{yy} = \frac{1}{N}\sum_{\mathbf{f}} \overline{Q}_{\mathbf{f}yy} ; \quad d_{xx} = \frac{1}{N}\sum_{\mathbf{f}} \overline{Q}_{\mathbf{f}xx} , \qquad (8)$$

где N — число спинов.

Энергия взаимодействия для системы (1) как функция термодинамических средних (8) имеет вид

$$\tilde{E} = \frac{E}{N} = (J - \tfrac{1}{2} B)M^2 + B(d_{xx}^2 + d_{yy}^2 + d_{zz}^2) . \qquad (9)$$

Обозначив через P_1, P_2, P_3 вероятности спиновых состояний $|\psi_1\rangle$, $|\psi_2\rangle$, $|\psi_3\rangle$, которые определяются через отношение числа частиц, находящихся в каждом из этих состояний, к общему числу частиц, запишем обычное выражение для энтропии в расчете на одну частицу

$$\sigma = -\sum_{i=1}^{3} P_i \ln P_i . \qquad (10)$$

Вычисляя $\overline{S}_z$, $\overline{Q}_{zz}$, $\overline{Q}_{yy}$, $\overline{Q}_{xx}$ в базисе (7), получаем, что параметры (8) можно выразить через φ, P_1, P_2, P_3:

$$M = (P_1 - P_2)\cos(2\varphi) ;$$
$$d_{xx} = 1 - \frac{1}{2}(P_1 + P_3) + \frac{1}{2}(P_1 - P_3)\sin(2\varphi) ,$$
$$d_{zz} = P_1 + P_3 ; \qquad (11)$$
$$d_{yy} = 1 - \frac{1}{2}(P_1 + P_3) - \frac{1}{2}(P_1 - P_3)\sin(2\varphi) .$$

Используя (11), выражение для энтропии можно представить в виде функции от M, d_{zz}, d_{xx}, d_{yy}. Следовательно, свободная энергия системы (1) запишется в виде

$$\tilde F = \frac{1}{N} F = \tilde E - T\sigma = \left(J - \frac{1}{2} B\right) M^2 + B \left[d_{zz}^2 + 2 \left(1 - \frac{1}{2} d_{zz}\right)^2 + \frac{1}{2} (d_{xx} - d_{yy})^2 \right] +$$
$$+ T \left[\frac{1}{2} (d_{zz} + \sqrt{M^2 + (d_{xx} - d_{yy})^2}\,) \ln \left(\frac{1}{2} (d_{zz} + \sqrt{M^2 + (d_{xx} - d_{yy})^2}\,) \right) + \right.$$
$$\left. + \frac{1}{2} (d_{zz} - \sqrt{M^2 + (d_{xx} - d_{yy})^2}\,) \ln \left(\frac{1}{2} (d_{zz} - \sqrt{M^2 + (d_{xx} - d_{yy})^2}\,) \right) + (1 - d_{zz}) \ln (1 - d_{zz}) \right] . \tag{12}$$

Для свободной энергии (12) возможны решения уравнений состояния, определяемые из минимума $\tilde F$ по M, d_{zz}, d_{xx}, d_{yy}: 1) решение с $M \neq 0$, $d_{zz} \neq d_{yy} \neq d_{xx}$, отвечающее ферромагнитной фазе; 2) квадрупольные решения с $M = 0$ и а) $d_{xx} = d_{yy} \neq d_{zz}$, б) $d_{zz} = d_{yy} \neq d_{xx}$, в) $d_{zz} = d_{xx} \neq d_{yy}$, отвечающие квадрупольной фазе; 3) решение с $M = 0$, $d_{zz} = d_{xx} = d_{yy} = 2/3$, отвечающее парамагнитной фазе (ПФ). Анализ, проведенный нами, также, как данные [4–7], показывает, что при $|B| << |J|$ будут реализовываться только решения 3) при $T > T_c$ и 1) при $T < T_c$, причем переход между ними будет II-го рода. При возрастании $|B|$ (но по-прежнему меньшем, чем $|J|$) этот переход становится переходом I-го рода. При $|B| > |J|$ фазовый переход с понижением T от состояния 3) к 1) заменится переходом I-го рода от 3) к 2в) при $T = T_Q$. Для выбора решений 2в) их трех решений 2) одного магнитного поля, которое ориентировано вдоль оси z, недостаточно, поскольку для однозначного определения ориентации квадрупольного момента необходимо исключить вырождение в плоскости, перпендикулярной полю. В рамках теории можно обсудить гипотетическую систему состояний при $T < T_c$, $T < T_Q$, возникающую при изменении величины B при неизменном J. Переход между ФФ и КФ при этом будет происходить при $B = J$ и будет переходом I-го рода. Естественно, его обсуждение имеет смысл только для теоретического осмысления результатов без какого-либо сопоставления с экспериментом. Поскольку это переход I-го рода, вопрос о преемственности системы координат для M и квадрупольного момента имеет также лишь иллюстративный интерес. Однако важно, что тензор квадрупольного момента в КФ соответствует виду сплюснутого эллипсоида, а в ФФ тот же тензор квадрупольного момента соответствует виду вытянутого эллипсоида. При помещении КФ в магнитное поле квадрупольный момент ориентируется так, чтобы магнитное поле оказалось в плоскости сплюснутого эллипсоида, а тензор квадрупольного момента КФ в магнитном поле становится двухосным. В случае помещения ФФ в магнитное поле направление M и, следовательно, вытянутая ось эллипсоида будут ориентированы вдоль поля, тензор сохранит одноосность.

С учетом этого для описания поведения этих фаз в единой системе координат удобно использовать рассмотрение в присутствии дополнительного гамильтониана, стабилизирующего пространственное вырождение системы (1), в виде

$$H = \sum_{\mathbf f} [(-h S_{z\mathbf f} + \tilde A (S_{z\mathbf f})^2 + \tilde B (S_{x\mathbf f})^2 + \tilde C (S_{y\mathbf f})^2] , \tag{13}$$

где поле h и параметры $\tilde A$, $\tilde B$, $\tilde C < 0$, $|\tilde A| > |\tilde B| > |\tilde C|$: $h \to 0$ и $\tilde A$, $\tilde B$, $\tilde C \to 0$ фиксируют квазисредние (метод Боголюбова) для M вдоль z и главных значений для квадрупольного момента, так что в КФ нормаль к плоскости сплюснутого эллипсоида лежит вдоль y.

Потенциал Ландау

Используя равенство $d_{zz} + d_{xx} + d_{yy} = 2$, следующее из $S_z^2 + S_x^2 + S_y^2 = 2$, разложим энергию (12) в ряд по M, $\Delta_{zz} = d_{zz} - 2/3$ и $\Delta_{xx} = d_{xx} - - 2/3$, ограничиваясь 4-ой степенью по малым M, Δ_{zz}, Δ_{xx}:

$$\Phi = \left(J - \frac{1}{2} B + \frac{3}{2^2} T\right) M^2 + \frac{3^2}{2^5} T M^4 + (2B + 3T)(\Delta_{zz}^2 + \Delta_{xx}^2) + \frac{3^2}{2} T(\Delta_{zz}^4 + \Delta_{xx}^4) + (2B + 3T)\Delta_{zz}\Delta_{xx} -$$
$$- \frac{3^2}{2} T(\Delta_{zz}^2 \Delta_{xx} + \Delta_{xx}^2 \Delta_{zz}) + 3^2 T(\Delta_{zz}^3 \Delta_{xx} + \Delta_{xx}^3 \Delta_{zz}) + \frac{3^3}{2} T \Delta_{zz}^2 \Delta_{xx}^2 +$$

$$+\frac{3^2}{2^2}TM^2(\Delta_{xx}^2+\Delta_{zz}^2)+\frac{3^2}{2}TM^2\Delta_{zz}\Delta_{xx}-\frac{3^2}{2^3}TM^2\Delta_{zz}. \tag{14}$$

Таким образом, потенциал Ландау системы (1) является функцией векторного и двух компонент тензорного параметров порядка.

Если B по порядку величины сравнимо с J, то для состояния $M \neq 0$, $\Delta_{zz} \neq 0$, $\Delta_{xx} \neq 0$ термодинамическая модель (14) сильно нелинейна [18]. Это означает, что потенциал Ландау ФФ, который можно представить в виде функции только от M, в отличие от (14) будет содержать более высокие степени по M, так как если $B \sim J$, то нельзя ограничиваться приближением прямой пропорциональности квадрупольного параметра порядка квадрату M. Слагаемые, описывающие взаимодействие квадрупольной природы, симметричны относительно перестановки $\Delta_{zz} \to \Delta_{xx}$, что позволяет реализоваться решению $\Delta_{zz} = \Delta_{xx}$ при $M = 0$. В случае $M \neq 0$ из последнего слагаемого в (14) следует, что $\Delta_{zz} \neq \Delta_{xx}$ и $\Delta_{zz} > \Delta_{xx}$.

Коэффициенты потенциала Ландау (14) имеют особенности, проявляющиеся в изменении знаков коэффициентов при инвариантах 2-ой степени от T, которые имеют место при

$$T_c = -\frac{2^2}{3}(J - \tfrac{1}{2}B),\ T_Q = -\frac{2}{3}B.$$

При $T = 0$ и $J = B$ энергии квадрупольного и ферромагнитного состояний равны, следовательно, при выполнении этого равенства и при $T = 0$ одно состояние переходит в другое. Но при $J = B$ выполняется равенство $T_c = T_Q$. Таким образом, как было сказано выше, для любых значений параметров J и B, когда $J \neq B$, в модели (1) реализуется только одна из фаз: или ФФ при $|J| > |B|$, или КФ при $|J| < |B|$ [7]. Эта особенность модели не зависит от степени разложения свободной энергии и, возможно, исчезнет при учете флуктуаций. Представляется интересным все-таки рассмотреть возможности, когда при $J \neq B$ в кристалле в разных интервалах температур существуют, сменяя друг друга, КФ и ФФ. В частности, возможный вариант устранения отмеченной выше особенности — это учет в (1) изотропных трехчастичных взаимодействий вида

$$D\sum_{\mathbf{f},\mathbf{g},\mathbf{l}}(\mathbf{S_f S_g})(\mathbf{S_g S_l}). \tag{15}$$

Это приведет к тому, что потенциал (14) будет содержать слагаемые $\tfrac{2}{3}DM^2$, $DM^2\Delta_{zz}$ и, следовательно, будут перенормированы коэффициенты при инвариантах M^2 и $M^2\Delta_{zz}$. Тогда фазовый переход при $T = 0$ происходит, если $J = B - D$. При этих значениях параметров обмена $T_Q \neq T_c$, а при $D < 0$ $T_Q > T_c$. Это означает, что при некоторых D и B существует интервал значений J, когда с ростом температуры реализуется сначала фазовый переход I-го рода из ФФ в КФ, а затем фазовый переход I-го рода из КФ в ПФ.

Магнитная восприимчивость и магнитострикция

Учтем в потенциале (14) магнитоупругие взаимодействия, аналогично тому, как это сделано в работе [1], а также зеемановское слагаемое

$$\begin{aligned}\Phi_2 &= a_1M^2 + a_2M^4 + b_1(\Delta_{zz}^2+\Delta_{xx}^2) + b_2(\Delta_{zz}^4+\Delta_{xx}^4) + b_3\Delta_{zz}\Delta_{xx} + b_4(\Delta_{zz}^2\Delta_{xx}+\Delta_{xx}^2\Delta_{zz}) + \\ &+ b_5(\Delta_{zz}^3\Delta_{xx}+\Delta_{zz}\Delta_{xx}^3) + b_6\Delta_{zz}^2\Delta_{xx}^2 + f_1M^2(\Delta_{zz}^2+\Delta_{xx}^2) + f_2M^2\Delta_{zz}\Delta_{xx} + f_3M^2\Delta_{zz} + \\ &+ \gamma M^2(U_{zz}+U_{xx}) + \eta(U_{zz}+U_{xx})(\Delta_{zz}+\Delta_{xx}) + c(U_{zz}^2+U_{xx}^2) - hM,\end{aligned} \tag{16}$$

где коэффициенты a, b, f соответствуют коэффициентам при соответствующих членах в выражении (14) с учетом возможных трехспиновых взаимодействий. В общем случае эти коэффициенты можно считать произвольными, ведь в (14) они получены в приближении среднего поля. Такая запись потенциала Ландау позволяет существенно упростить выражения, получаемые при вычислениях. Было бы полезно провести термодинамический анализ модели (16) в самом общем виде.

Магнитоупругие взаимодействия межспиновой природы обозначены константой γ, тогда как константа η имеет одночастичное происхождение [19]. Минимизируя потенциал (16) по U_{zz} и U_{xx}, получаем, что магнитострикция в (16) прямо пропорциональна M^2, Δ_{zz} и Δ_{xx}. Деформация решетки происходит в плоскости z, x, так что выполняется равенство

$$U_{zz} = U_{xx} = -\frac{\gamma M^2 + \eta(\Delta_{zz} + \Delta_{xx})}{2c} . \qquad (17)$$

Чтобы не усложнять задачу, в потенциале (16) не учитываются магнитоупругие взаимодействия, связанные с ориентацией намагниченности относительно кристаллографических осей. Из (17) следует, что из-за одночастичных магнитоупругих взаимодействий в КФ, в которой $M = 0$, а $\Delta_{zz} = \Delta_{xx} \neq 0$, будут наблюдаться деформации решетки, отличающиеся от аналогичных деформаций в магнетиках с большой одноионной анизотропией [19], так как они связаны с возникновением квадрупольного порядка и будут иметь аномальный характер зависимости от температуры [1]. В зависимости от соотношения констант γ и η такая магнитострикция может превосходить деформации решетки в ФФ.

Кроме этого, при помещении такой системы в магнитное поле будут происходить деформации, которые, как и в случае анизотропных магнетиков, пропорциональны h^2. В [15,16,20] описание такой магнитострикции проводилось с использованием обобщенных восприимчивостей потенциала Ландау. Однако в силу квадратичного характера зависимости величины деформаций от поля представляется уместным рассчитать производные $(\partial^2 U_{zz})/\partial h^2$ и $(\partial^2 U_{xx})/\partial h^2$. Учитывая соотношения (17) и дважды дифференцируя по полю уравнения состояния потенциала (16)

$$\frac{\partial \Phi_2}{\partial M} = 0 , \quad \frac{\partial \Phi_2}{\partial \Delta_{zz}} = 0 , \quad \frac{\partial \Phi_2}{\partial \Delta_{xx}} = 0 , \qquad (18)$$

получаем предельные по h (при $h \to 0$) выражения:

$$\left.\frac{\partial^2 U_{zz}}{\partial h^2}\right|_{h\to 0} = \left.\frac{\partial^2 U_{xx}}{\partial h^2}\right|_{h\to 0} =$$

$$= -\frac{\gamma}{c}\chi^2 - \frac{\eta}{2c}\left(\left.\frac{\partial^2 \Delta_{zz}}{\partial h^2}\right|_{h\to 0} + \left.\frac{\partial^2 \Delta_{xx}}{\partial h^2}\right|_{h\to 0}\right). \qquad (19)$$

Здесь χ — магнитная восприимчивость при $h \to 0$,

$$\chi = \frac{1}{2(a_1 + f_3\Delta + (2f_1 + f_2)\Delta^2} ; \qquad (20)$$

$$\left.\frac{\partial^2 \Delta_{zz}}{\partial h^2}\right|_{h\to 0} + \left.\frac{\partial^2 \Delta_{xx}}{\partial h^2}\right|_{h\to 0} =$$

$$= -\frac{2f_3 + 4(f_2 + 2f_1)\Delta}{2b_1 + b_3 + 6b_4\Delta + 6(2b_2 + 2b_5 + b_6)\Delta^2}\chi^2 . \qquad (21)$$

В выражении (20) и (21) Δ обозначено $\Delta = \Delta_{xx} = \Delta_{zz}$, что справедливо для состояния с $M = 0$, так как $h \to 0$.

Из (20) следует, что в ПФ, когда $M = 0$, $\Delta_{zz} = \Delta_{xx} = 0$, обратная восприимчивость $\sim T$ $(\chi^{-1} \cong a_1)$, т.е. аналогична закону Кюри—Вейсса.

Если КФ предшествует ФФ, то $\Delta \neq 0$ и зависимость $\chi^{-1}(T)$ будет нелинейной. Вклад в знаменатель в выражении для χ может сильно зависеть от величины Δ, так как параметры f_1, f_2 и f_3 не малы и имеют разные знаки. Подставляя (20) и (21) в (19), получаем, что

$$\left.\frac{\partial^2 U_{zz}}{\partial h^2}\right|_{h\to 0} = \left.\frac{\partial^2 U_{xx}}{\partial h^2}\right|_{h\to 0} =$$

$$= \left[-\frac{\gamma}{c} + \frac{\eta}{c}\,\frac{f_3 + 2(f_2 + 2f_1)\Delta}{2b_1 + b_3 + 6b_4\Delta + 6(2b_2 + 2b_5 + b_6)\Delta^2}\right]\chi^2 . \qquad (22)$$

В парамагнитном состоянии, когда $\Delta = 0$, это выражение запишется в виде

$$\left.\frac{\partial^2 U_{zz}}{\partial h^2}\right|_{h\to 0} = \left.\frac{\partial^2 U_{xx}}{\partial h^2}\right|_{h\to 0} =$$

$$= \left[-\frac{\gamma}{c} + \frac{\eta}{c}\,\frac{f_3}{(2b_1 + b_3)}\right]\chi^2 . \qquad (23)$$

Таким образом, температурная зависимость вторых производных деформаций по полю имеет две особенности. Первая связана с обращением в нуль обратной восприимчивости χ^{-1} при $T = T_c$, когда $a_1 = 0$. Вторая — с обращением в нуль знаменателя в скобках в (23) $(2b_1 + b_3 = 0)$ при $T = T_Q$. Подчеркнем, что вторая особенность реализуется при большом БО и при наличии квадрупольно-упругих взаимодействий.

Фазовый переход из ПФ в КФ протекает в виде перехода I-го рода. Температура перехода выше T_Q, поэтому при $T = T_Q$ равенство $\Delta = 0$ не выполняется. Однако численные расчеты, сделанные в [6], показывают, что различие между

T_Q и температурой фазового перехода составляет лишь несколько процентов. Поэтому особенность в температурной зависимости вторых производных деформаций по полю будет не только асимптотической, но в силу малого различия T_Q и температуры фазового перехода произойдет значительное увеличение значений вторых производных по полю в этом интервале температур.

Заключение

Завершая термодинамический анализ магнитного упорядочения одноподрешеточной системы спинов с $S = 1$ и большим БО, выделим несколько важных особенностей, позволяющих отличать такие системы от гейзенберговских магнетиков с билинейным обменом. Первая — сильная нелинейность термодинамического потенциала Ландау, которая может привести к нетипичной зависимости намагниченности от температуры. Вторая — отклонение от закона Кюри—Вейсса для магнитной восприимчивости, обусловленное возникновением квадрупольного порядка. Третья — аномалии в температурной зависимости деформаций решетки для температур выше температуры магнитного упорядочения, также связанные с возникновением квадрупольного порядка. Четвертая — существование особенности в температурной зависимости вторых производных деформаций от поля, которая возможна при одночастичном механизме магнитоупругих взаимодействий при квадрупольном упорядочении.

Авторы считают приятным долгом выразить благодарность С. М. Рябченко, указавшему на особую специфичность описания магнитных свойств изотропных спиновых систем, за многочисленные и очень полезные обсуждения этой работы и В. М. Локтеву, высказавшему полезные замечания по тексту статьи.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Государственного фонда фундаментальных исследований Министерства науки и технологий Украины по проекту 2.4/734.

1. В. М. Калита, А. Ф. Лозенко, П. А. Троценко, *ФНТ* **21**, 671 (1995).
2. А. Ф. Андреев, И. А. Грищук, *ЖЭТФ* **87**, 467 (1984).
3. Э. Л. Нагаев, *Магнетики со сложными обменными взаимодействиями*, Наука, Москва (1988).
4. H. H. Chen and P. M. Levy, *Phys. Rev. Lett.* **27**, 1383 (1971).
5. В. М. Матвеев, *ЖЭТФ* **65**, 1626 (1973).
6. N. Nauciel-Bloch, G. Sarma, and A. Castets, *Phys. Rev.* **B5**, 4603 (1972).
7. H. H. Chen and P. M. Levy, *Phys. Rev.* **B7**, 4267 (1973).
8. В. М. Калита, *ФТТ* **33**, 1940 (1991).
9. М. А. Леонтович, *ЖЭТФ* **8**, 844 (1938).
10. В. Г. Барьяхтар, И. М. Витебский, Д. А. Яблонский, *ФТТ* **19**, 2135 (1977).
11. В. М. Калита, В. М. Локтев, *УФЖ* **40**, 235 (1995).
12. В. М. Локтев, В. С. Островский, *УФЖ* **23**, 1708 (1978).
13. В. М. Локтев, В. С. Островский, *ФНТ* **20**, 983 (1994).
14. С. В. Тябликов, *Методы квантовой теории магнетизма*, Наука, Москва (1965).
15. P. Morin, D. Schmitt, and Tr. Lacheisserie, *Phys. Rev.* **B21**, 1742 (1980).
16. P. Morin and D. Schmitt, *Phys. Rev.* **B27**, 4412 (1983).
17. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, Наука, Москва (1976).
18. Ю. М. Гуфан, *Структурные фазовые переходы*, Наука, Москва (1982).
19. А. К. Звездин, В. М. Матвеев, А. А. Мухин, А. И. Попов, *Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах*, Наука, Москва (1985).
20. P. Morin and D. Schmitt, *Phys. Rev.* **B26**, 3891 (1982).

Description of ordering, temperature dependence of susceptibility and magnetostriction of single-sublattice spin system with $S = 1$ and large biquadratic exchange

V. M. Kalita and A. F. Lozenko

The analysis is performed of magnetic ordering model for the single-sublattice spin system with $S = 1$ and with large biquadratic exchange, its energy being of the same order of magnitude as the energy of pair exchange interaction. In the microscopic approximation the expression is derived for the free energy. This expression is used to determine and analyze the phase states. The Landau potential is represented as a power expansion of the microscopic free energy. Using the expansion the temperature-dependent features of the magnetic susceptibility and the magnetoelastic deformation are described.