

# Квадрупольные фазы и фазовые переходы в одноосных магнетиках с тензорными взаимодействиями

И.П. Шаповалов

*Одесский национальный университет им. И.И. Мечникова  
ул. Дворянская, 2, г. Одесса, 65082, Украина  
E-mail: shapovalov@onu.edu.ua*

Статья поступила в редакцию 1 октября 2012 г.

Исследованы одноосные магнетики с единичным спином при наличии одноионной анизотропии и анизотропного биквадратичного обменного взаимодействия в отсутствие магнитного поля. Изучены возможные типы квадрупольного упорядочения в системе при условии, что анизотропия биквадратичного обменного взаимодействия имеет наиболее общий для аксиальной симметрии вид. Кроме двух фаз с неподвижными плоскостями квадрупольного упорядочения (фазы  $KU_Z$  и  $KU_X$ ), в системе может реализовываться фаза, в которой при изменении параметров гамильтониана ориентация плоскости квадрупольного упорядочения непрерывно изменяется (фаза  $KU_<$ ). Для фазы  $KU_X$  найдены две ветви спектра спиновых возбуждений, одна из которых содержит голдстоуновскую моду. Определены границы фазы  $KU_<$  с двумя другими квадрупольными фазами при конечных температурах. При этом выражение для границы фаз  $KU_Z$  и  $KU_<$  получено в аналитическом виде.

Досліджено одноосові магнетики з одиничним спіном за наявності одноіонної анізотропії та анізотропної біквадратичної обмінної взаємодії у відсутності магнітного поля. Вивчено можливі типи квадрупольного упорядкування в системі за умови, що анізотропія біквадратичної обмінної взаємодії має найбільш загальний для аксіальної симетрії вигляд. Крім двох фаз з нерухомими площинами квадрупольного упорядкування (фазы  $KU_Z$  та  $KU_X$ ), в системі може реалізовуватися фаза, в якій зі зміною параметрів гамильтоніана орієнтація площини квадрупольного упорядкування безперервно змінюється (фаза  $KU_<$ ). Для фазы  $KU_X$  знайдено дві вітки спектра спинових збуджень, одна з яких містить голдстоунівську моду. Визначено границі фазы  $KU_<$  з двома іншими квадрупольними фазами за скінченних температур. При цьому вираз для границі фаз  $KU_Z$  та  $KU_<$  одержано в аналітичному вигляді.

PACS: **75.10.-b** Общая теория и модели магнитного упорядочения;  
75.30.Gw Магнитная анизотропия.

Ключевые слова: одноионная анизотропия, биквадратичное обменное взаимодействие, квадрупольная фаза, фазовые переходы.

## 1. Введение

Существует широкий класс магнитных систем, для исследования которых модель Гейзенберга оказывается неприемлемой. В частности, это магнитные диэлектрики с большим значением констант тензорных взаимодействий: биквадратичного обменного взаимодействия (БОВ) и одноионной анизотропии (ОА) [1]. Например, в соединениях  $TmZn$ ,  $GeB_6$ ,  $DyCu$  константа БОВ превосходит константу обычного обменного взаимодействия (ОВ) [2–4], а в соединениях  $CsFeBr_3$  и

$CsFeCl_3$  отношение константы ОА к константе ОВ составляет несколько десятков [5]. Такие вещества являются объектом повышенного интереса теоретиков и экспериментаторов [6–16]. Причина этого интереса состоит в том, что в магнетиках с сильными тензорными взаимодействиями могут возникать квадрупольные и квадрупольно-ферромагнитные фазы, которые при определенных значениях параметров гамильтониана реализовываются в качестве основного состояния системы. Изучение этих фаз — актуальная задача современной физики магнитных явлений.

В работе [8] изучены типы квадрупольного упорядочения в одноосном магнетике с единичным спином при наличии ОА и анизотропного БОВ. Показано, что в том случае, когда внешнее магнитное поле отсутствует, а анизотропия БОВ имеет наиболее общий для одноосной симметрии вид, в системе возможны три типа квадрупольных фаз:  $KY_Z$ ,  $KY_X$  и  $KY_<$ . В фазе  $KY_Z$  в основном состоянии проекция магнитного момента каждого атома на ось симметрии (ось  $OZ$ ) равна нулю, т.е. плоскостью упорядочения является плоскость  $XOY$ . Плоскость упорядочения, соответствующая фазе  $KY_X$ , — это плоскость  $YOZ$ . В фазе  $KY_<$  плоскость упорядочения образует с осями координат некоторые углы, которые непрерывно изменяются при изменении параметров гамильтониана. К сожалению, авторы работы [8] ограничились своими исследованиями случаем нулевой температуры.

В работе [17] некоторые результаты работы [8] были обобщены на случай конечных температур, однако случай нулевого внешнего магнитного поля, когда возможно возникновение фазы  $KY_<$ , рассмотрен не был.

В других работах, посвященных исследованию квадрупольных фаз в одноосных магнетиках, изучена анизотропия БОВ более частного вида, не допускающего возникновения фазы  $KY_<$  (см., например, [15]).

В настоящей работе представлены результаты исследования границ фазы  $KY_<$  с фазами  $KY_Z$  и  $KY_X$  в координатах температура–константа ОА. При этом выражение для границы между фазами  $KY_Z$  и  $KY_<$  получено в аналитическом виде.

## 2. Гамильтониан системы и унитарное преобразование

Все взаимодействия в магнитной системе с единичным спином могут быть описаны с помощью операторов алгебры Ли группы  $SU(3)$ . В качестве образующих этой алгебры можно выбрать три спиновых оператора  $S^l$  ( $l = x, y, z$ ) и пять квадрупольных операторов  $Q^p$  ( $p = 0, \pm 1, \pm 2$ ). Операторы  $Q^p$  определены следующим образом:

$$Q^0 = 3(S^z)^2 - 2I, Q^1 = -(S^z S^y + S^y S^z), Q^{-1} = S^z S^x + S^x S^z, \\ Q^2 = (S^x)^2 - (S^y)^2, Q^{-2} = -(S^x S^y + S^y S^x), \quad (1)$$

где  $I$  — единичная матрица.

Средние значения  $\langle S^l \rangle$  и  $\langle Q^p \rangle$  образуют многокомпонентный параметр порядка (ПП). Соответствующим выбором оси  $OY$  можно добиться выполнения условия

$$\langle S^y \rangle = \langle Q^1 \rangle = \langle Q^{-2} \rangle = 0, \quad (2)$$

поэтому в общем случае отличны от нуля только пять составляющих ПП:  $\langle S^z \rangle$ ,  $\langle S^x \rangle$ ,  $\langle Q^0 \rangle$ ,  $\langle Q^{-1} \rangle$  и  $\langle Q^2 \rangle$ .

Наиболее общий вид одноосного гамильтониана, построенного на операторах  $S^l$  и  $Q^p$ :

$$H = -\sum_{i,j} J_{ij} \left[ S_i^z S_j^z + \xi (S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y) \right] + \frac{1}{3} D \sum_i Q_i^0 - \\ - \sum_{i,j} K_{ij} \left[ \frac{1}{3} Q_i^0 Q_j^0 + \eta (Q_i^1 Q_j^1 + Q_i^{-1} Q_j^{-1}) + \zeta (Q_i^2 Q_j^2 + Q_i^{-2} Q_j^{-2}) \right], \quad (3)$$

где  $J_{ij}$  — константы ОБ,  $\xi$  — константа анизотропии ОБ,  $D$  — константа ОА,  $K_{ij}$  — константы БОВ,  $\eta, \zeta$  — константы анизотропии БОВ.

Далее ограничимся рассмотрением магнитных структур с одной подрешеткой, что достигается положительностью констант  $J_{ij}$  и  $K_{ij}$ . Кроме того, будем полагать, что все константы анизотропии больше единицы.

В приближении молекулярного поля гамильтониан имеет вид

$$H_0 = \alpha_1 \sum_i S_i^z + \alpha_2 \sum_i Q_i^0 + \alpha_3 \sum_i S_i^x + \alpha_4 \sum_i Q_i^{-1} + \alpha_5 \sum_i Q_i^2, \quad (4)$$

где величины  $\alpha_n$  определяются выражениями

$$\alpha_1 = -2J_0 \langle S^z \rangle, \alpha_2 = \frac{1}{3} (D - 2K_0 \langle Q^0 \rangle), \alpha_3 = -2\xi J_0 \langle S^x \rangle, \\ \alpha_4 = -2\eta K_0 \langle Q^{-1} \rangle, \alpha_5 = -2\zeta K_0 \langle Q^2 \rangle \\ (J_0 = \sum_i J_{i,j}, K_0 = \sum_i K_{i,j}). \quad (5)$$

Для определения возможных типов однородного упорядочения, допускаемых моделью (3), воспользуемся методом унитарного преобразования, который предложен в работах [18,19]. Коротко этот метод состоит в следующем. Множество всех одночастичных гамильтонианов вида (4) с различными наборами величин  $\alpha_n$  образует линейное пространство. При этом входящие в (4) суммы  $\sum_i S_i^l$  и  $\sum_i Q_i^p$  являются базисными функциями этого пространства. Подвергая эти базисные функции трехпараметрическому унитарному преобразованию, получаем гамильтониан  $H_0$  в новом базисе:

$$H_0 = \tilde{\alpha}_1 \sum_i \tilde{S}_i^z + \tilde{\alpha}_2 \sum_i \tilde{Q}_i^0 + \tilde{\alpha}_3 \sum_i \tilde{S}_i^x + \tilde{\alpha}_4 \sum_i \tilde{Q}_i^{-1} + \tilde{\alpha}_5 \sum_i \tilde{Q}_i^2, \quad (6)$$

где «тильдой» обозначены преобразованные величины.

Соответствующим выбором трех параметров преобразования можно добиться выполнения условия

$$\tilde{\alpha}_3 = 0, \tilde{\alpha}_4 = 0, \tilde{\alpha}_5 = 0. \quad (7)$$

При этом гамильтониан  $H_0$  принимает диагональный вид:

$$H_0 = \tilde{\alpha}_1 \sum_i \tilde{S}_i^z + \tilde{\alpha}_2 \sum_i \tilde{Q}_i^0. \quad (8)$$

Подходящее унитарное преобразование получено в [18]:

$$V = \exp(-i\psi Q^{-2}) \exp(i\chi Q^1) \exp(i\phi S^y), \quad (9)$$

где  $\phi, \chi, \psi$  — параметры преобразования.

Каждому набору параметров  $\phi, \chi, \psi$ , удовлетворяющих системе (7), соответствует определенный тип

однородного упорядочения. Поэтому определение всех решений системы (7) позволяет исчерпывающим образом решить задачу о возможных типах однородного упорядочения в одноосном SU(3)-магнетике.

Отметим, что в новом базисе отличны от нуля только средние значения диагональных операторов:  $\langle \tilde{S}^z \rangle \equiv \sigma$  и  $\langle \tilde{Q}^0 \rangle \equiv \lambda$  [19].

Для одноосного магнетика при конечных температурах явный вид системы (7) получен в [17]. Приведем его для случая нулевого внешнего магнитного поля. Первые два уравнения имеют вид

$$\begin{aligned} & (1/2) D \sin 2\phi \cos \chi + \sigma (J_0 - K_0) \sin 2\chi \cos 2\psi + \sigma \sin 2\chi \cos 2\psi \times \\ & \times [J_0 (\xi - 1) \sin^2 \phi - (1/4) K_0 (\zeta - 1) \sin^2 2\phi - K_0 (\eta - 1) \cos^2 \phi] + \sigma \sin 2\phi \cos \chi \sin 2\psi \times \\ & \times [-J_0 (\xi - 1) \sin^2 \chi + (1/2) K_0 (\zeta - 1) (\cos 2\phi + 2 \cos^2 \chi - \cos^2 \phi \cos^2 \chi) - \\ & - K_0 (\eta - 1) \cos 2\phi (1 + \sin^2 \chi)] + \lambda \sin 2\phi \cos \chi [-J_0 (\xi - 1) \sin^2 \chi + \\ & + (1/2) K_0 (\zeta - 1) (\cos 2\chi - \cos^2 \phi \cos^2 \chi) + K_0 (\eta - 1) \cos 2\phi \cos^2 \chi] = 0, \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} & (1/2) D \cos^2 \phi \sin 2\chi + (1/2) (J_0 - K_0) \sin 4\chi (\lambda + \sigma \sin 2\psi) + \sigma \sin 2\phi \cos \chi \cos 2\psi \times \\ & \times [-J_0 (\xi - 1) \cos 2\chi + K_0 (\zeta - 1) \sin^2 \chi (1 + \sin^2 \phi) + 2K_0 (\eta - 1) \cos 2\phi \sin^2 \chi] + \\ & + \sigma \sin 2\chi \sin 2\psi [J_0 (\xi - 1) \cos^2 \phi \cos 2\chi - (1/2) K_0 (\zeta - 1) (1 + \sin^2 \phi) \times \\ & \times (\cos 2\phi + 2 \cos^2 \chi - \cos^2 \phi \cos^2 \chi) + (1/2) K_0 (\eta - 1) \sin^2 2\phi (1 + \sin^2 \chi)] + \\ & + \lambda \sin 2\chi [J_0 (\xi - 1) \cos^2 \phi \cos 2\chi - (1/2) K_0 (\zeta - 1) (1 + \sin^2 \phi) (\cos 2\chi - \cos^2 \phi \cos^2 \chi) - \\ & - (1/2) K_0 (\eta - 1) \sin^2 2\phi \cos^2 \chi] = 0. \end{aligned} \quad (11)$$

Третье уравнение может быть представлено в виде

$$C_1 \sin 2\psi + C_2 \cos 2\psi = 0, \quad (12)$$

где  $C_1$  и  $C_2$  определяются следующими выражениями:

$$\begin{aligned} C_1 = & -(1/2) D \sin 2\phi \sin \chi + 2\sigma (J_0 - K_0) \cos^2 \chi \cos 2\psi + 2\sigma K_0 \cos 2\psi + \\ & + \sigma \sin 2\phi \sin \chi \sin 2\psi [-J_0 (\xi - 1) \cos^2 \chi - (1/2) K_0 (\zeta - 1) \times \\ & \times (\cos 2\phi + 2 \cos^2 \chi - \cos^2 \phi \cos^2 \chi) + K_0 (\eta - 1) \cos 2\phi (1 + \sin^2 \chi)] + \\ & + 2\sigma \cos 2\psi [J_0 (\xi - 1) \sin^2 \phi \cos^2 \chi + (1/4) K_0 (\zeta - 1) \sin^2 2\phi \sin^2 \chi + K_0 (\eta - 1) \cos^2 2\phi \sin^2 \chi] + \\ & + \lambda \sin 2\phi \sin \chi [-J_0 (\xi - 1) \cos^2 \chi - (1/2) K_0 (\zeta - 1) (\cos 2\chi - \cos^2 \phi \cos^2 \chi) - K_0 (\eta - 1) \cos 2\phi \cos^2 \chi], \end{aligned} \quad (13)$$

$$\begin{aligned}
 C_2 = & (1/2)D(\cos^2 \varphi \cos^2 \chi - \cos 2\varphi) - (1/2)(J_0 - K_0)\sin^2 2\chi(\lambda + \sigma \sin 2\psi) - \\
 & - 2\sigma K_0 \sin 2\psi + \sigma \sin 2\psi \left[ -(1/2)J_0(\xi - 1)\cos^2 \varphi \sin^2 2\chi - (1/2)K_0(\zeta - 1) \times \right. \\
 & \times (\cos 2\varphi + 2\cos^2 \chi - \cos^2 \varphi \cos^2 \chi)^2 - (1/2)K_0(\eta - 1)\sin^2 2\varphi(1 + \sin^2 \chi)^2 \left. \right] + \\
 & + \sigma \sin 2\varphi \sin \chi \cos 2\psi \left[ J_0(\xi - 1)\cos^2 \chi + (1/2)K_0(\zeta - 1) \times \right. \\
 & \times (\cos^2 \varphi + \cos^2 \chi - \sin^2 \varphi \sin^2 \chi) - K_0(\eta - 1)\cos 2\varphi(1 + \sin^2 \chi) \left. \right] + \\
 & + \lambda \left[ -(1/2)J_0(\xi - 1)\sin^2 2\chi \cos^2 \varphi - (1/2)K_0(\zeta - 1)(\cos 2\chi - \cos^2 \varphi \cos^2 \chi) \times \right. \\
 & \times (\cos^2 \varphi + \cos^2 \chi - \sin^2 \varphi \sin^2 \chi) + (1/2)K_0(\eta - 1)\sin^2 2\varphi(1 + \sin^2 \chi)\cos^2 \chi \left. \right].
 \end{aligned} \tag{14}$$

Приведем также выражения для  $\tilde{\alpha}_1$  и  $\tilde{\alpha}_2$ :

$$\tilde{\alpha}_1 = -C_1 \cos 2\psi + C_2 \sin 2\psi, \tag{15}$$

$$\begin{aligned}
 \tilde{\alpha}_2 = & (1/6)D(3\cos^2 \varphi \cos^2 \chi - 1) - (1/2)(J_0 - K_0)\sin^2 2\chi(\lambda + \sigma \sin 2\psi) - \\
 & - (2/3)\lambda K_0 + J_0(\xi - 1)\cos \varphi \sin 2\chi [\sigma \sin \varphi \cos \chi \cos 2\psi - \\
 & - (1/2)\cos \varphi \sin 2\chi(\lambda + \sigma \sin 2\psi)] - (1/2)K_0(\zeta - 1)(\sin^2 \varphi \cos^2 \chi - \sin^2 \chi) \times \\
 & \times \left\{ \sigma \left[ -\sin 2\varphi \sin \chi \cos 2\psi + \sin 2\psi (\cos 2\varphi + 2\cos^2 \chi - \cos^2 \varphi \cos^2 \chi) \right] + \right. \\
 & + \lambda (\cos 2\chi - \cos^2 \varphi \cos^2 \chi) \left. \right\} - K_0(\eta - 1)\sin 2\varphi \cos^2 \chi \left\{ -\sigma [\cos 2\varphi \sin \chi \cos 2\psi + \right. \\
 & + (1/2)\sin 2\varphi(1 + \sin^2 \chi)\sin 2\psi \left. \right] + (1/2)\lambda \sin 2\varphi \cos^2 \chi \left. \right\}.
 \end{aligned} \tag{16}$$

Определенные формулами (15) и (16) величины  $\tilde{\alpha}_1$  и  $\tilde{\alpha}_2$  позволяют определить энергетические уровни отдельного атома, соответствующие трем возможным значениям  $\tilde{S}^z$  ( $\tilde{S}^z = 1, 0, -1$ ):

$$E^1 = \tilde{\alpha}_1 + \tilde{\alpha}_2, \quad E^0 = -2\tilde{\alpha}_2, \quad E^{-1} = -\tilde{\alpha}_1 + \tilde{\alpha}_2. \tag{17}$$

Величины  $\sigma$  и  $\lambda$  при конечных температурах могут быть вычислены с помощью распределения Гиббса [20]:

$$\sigma = \frac{\sum_n \tilde{S}_n^z \exp(-E_n/kT)}{\sum_n \exp(-E_n/kT)}, \quad \lambda = \frac{\sum_n \tilde{Q}_n^0 \exp(-E_n/kT)}{\sum_n \exp(-E_n/kT)}, \tag{18}$$

где  $k$  — постоянная Больцмана,  $T$  — абсолютная температура.

Система (18) имеет три решения, соответствующие трем различным базисам, в которых гамильтониан  $H_0$  является диагональным [8]. В дальнейшем будем использовать такое решение системы (18), для которого при  $T \rightarrow 0$  выполняется условие  $\sigma \rightarrow 0$ ,  $\lambda \rightarrow -2$ . В соответствующем этому решению базисе нижним энергетическим уровнем атома является уровень с  $\tilde{S}^z = 0$ .

При этом энергия основного состояния системы задается формулой

$$E_0 = -2N\tilde{\alpha}_{20}, \tag{19}$$

где  $N$  — количество узлов кристаллической решетки,  $\tilde{\alpha}_{20}$  — значение  $\tilde{\alpha}_2$  при условии  $T = 0$ .

В настоящей работе исследуется только квадрупольное упорядочение, поэтому будем полагать, что константа  $J_0$  мала по сравнению с константами  $D$  и  $K_0$ .

Отметим, что в квадрупольных фазах в отсутствие внешнего магнитного поля макроскопическая намагниченность равна нулю, поэтому отличными от нуля остаются не более трех компонент ПП:  $\langle Q^0 \rangle$ ,  $\langle Q^{-1} \rangle$  и  $\langle Q^2 \rangle$ .

Далее рассмотрим такие решения системы уравнений (10)–(12), которые соответствуют квадрупольным фазам.

### 3. Фаза КУЗ

Очевидно, что система уравнений (10)–(12) имеет тривиальное решение:

$$\varphi = \chi = \psi = 0. \tag{20}$$

Унитарное преобразование с параметрами (20) является тождественным, поэтому новый базис совпадает с исходным. Соответственно, отличной от нуля оказывается единственная компонента ПП

$$\langle Q^0 \rangle = \lambda. \quad (21)$$

При нулевой температуре равенство (21) принимает вид

$$\langle Q^0 \rangle = -2. \quad (22)$$

Равенство (22) описывает такое упорядочение, при котором для каждого атома системы выполняется условие  $S^z = 0$ . Условно можно представить, что магнитный момент каждого атома совершает прецессию в плоскости, перпендикулярной оси  $OZ$ . Это состояние системы будем называть фазой  $KY_Z$ . (Другое встречающееся в литературе название — фаза  $KY_2$  [21,22].) Для фазы  $KY_Z$  ось  $OZ$  является осью аксиальной симметрии.

Для модели (3) фаза  $KY_Z$  изучена в [23]. Приведем полученные в [23] выражения для энергии основного состояния системы и границы устойчивости спектра спиновых возбуждений при конечных температурах:

$$E_0(KY_Z) = N \left( -\frac{2}{3}D - \frac{8}{3}K_0 \right), \quad (23)$$

$$\left[ D - 2\langle Q^0 \rangle K_0 (1 - \xi J_0 / K_0) \right] \left[ D - 2\langle Q^0 \rangle K_0 (1 - \eta) \right] = 0. \quad (24)$$

Учитывая неравенство  $\xi J_0 < K_0$  и принимая во внимание, что в фазе  $KY_Z$  компонента ПП  $\langle Q^0 \rangle$  представляет собой отрицательную величину, можно утверждать, что первый множитель в (24) положительный. Поэтому выражение (24) можно представить в более простом виде:

$$D - 2\langle Q^0 \rangle K_0 (1 - \eta) = 0. \quad (25)$$

Поскольку в отсутствие внешнего магнитного поля условие  $\sigma = 0$  выполняется во всем интервале температур, соответствующих фазе  $KY_Z$ , первое уравнение системы (18) выполняется тождественно. При этом из второго уравнения системы можно получить явную зависимость температуры от единственной отличной от нуля составляющей ПП  $\langle Q^0 \rangle$ :

$$T = \frac{D - 2K_0 \langle Q^0 \rangle}{k \ln \left[ \frac{(2 - 2\langle Q^0 \rangle)}{(2 + \langle Q^0 \rangle)} \right]}. \quad (26)$$

Из (25) и (26) можно получить связь критической температуры, соответствующей потере устойчивости фазы  $KY_Z$ , с параметрами гамильтониана:

$$T_C = \frac{\eta D}{k(\eta - 1) \ln \left[ \frac{4K_0(\eta - 1) + 2D}{4K_0(\eta - 1) - D} \right]}. \quad (27)$$

#### 4. Фаза $KY_X$

Следующее «квадрупольное» решение системы уравнений (10)–(12) имеет вид

$$\varphi = \pi/2, \quad \chi = 0, \quad \psi = \pi/4. \quad (28)$$

В общем случае связь операторов  $S^l, Q^p$  с операторами  $\tilde{S}^l, \tilde{Q}^p$  задается с помощью матриц Вигнера. Приведем эту связь для случая, когда параметры  $\varphi, \chi, \psi$  определены формулами (28):

$$\begin{aligned} S^x &= -\tilde{Q}^2, \quad S^y = \frac{1}{\sqrt{2}}(\tilde{S}^y + \tilde{Q}^1), \quad S^z = -\frac{1}{\sqrt{2}}(\tilde{S}^x + \tilde{Q}^{-1}), \\ Q^0 &= \frac{1}{2}(3\tilde{S}^z - \tilde{Q}^0), \\ Q^1 &= -\tilde{Q}^{-2}, \quad Q^{-1} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\tilde{S}^x - \tilde{Q}^{-1}), \\ Q^2 &= \frac{1}{2}(\tilde{S}^z + \tilde{Q}^0), \quad Q^{-2} = -\frac{1}{\sqrt{2}}(\tilde{S}^y - \tilde{Q}^1). \end{aligned} \quad (29)$$

Из (29) находим отличные от нуля компоненты ПП:

$$\langle Q^0 \rangle = \frac{1}{2}(3\sigma - \lambda), \quad \langle Q^2 \rangle = \frac{1}{2}(\sigma + \lambda). \quad (30)$$

При нулевой температуре формулы (30) принимают вид

$$\langle Q^0 \rangle = 1, \quad \langle Q^2 \rangle = -1. \quad (31)$$

Компоненты ПП (31) соответствуют такому упорядочению, при котором проекция магнитного момента каждого атома на ось  $OX$  равна нулю. Условно можно представить, что магнитный момент каждого атома совершает прецессию в плоскости, перпендикулярной оси  $OX$ . Такую фазу будем называть фазой  $KY_X$  [8]. (Авторы работ [21,22] используют название фаза  $KY_1$ .) Наличие в фазе  $KY_X$  плоскости упорядочения (плоскость  $YOZ$ ) нарушает аксиальную симметрию системы. Однако при отсутствии в системе макроскопической намагнитченности выбор направления оси  $OY$  в плоскости, перпендикулярной оси симметрии гамильтониана, произвольный. Этот произвол приводит к произволу в ориентации плоскости квадрупольного упорядочения и, соответственно, к восстановлению аксиальной симметрии. При этом основное состояние системы бесконечно вырожденное. Тем не менее в реальных системах всегда существуют малые дополнительные поля, фиксирующие положение плоскости квадрупольного упорядочения, что в свою очередь приводит к нарушению аксиальной симметрии. Для того чтобы учесть это обстоятельство, целесообразно использовать метод «боголюбовских квазисредних» [24]. В основе этого метода лежит искусственное введение дополнительных полей (магнитных или квадрупольных), расчет компонент ПП при наличии этих полей и переход в полученных формулах к пределу при стремлении дополни-

тельных полей к нулю. При введении дополнительного поля, ориентирующего магнитные моменты атомов в плоскости YOZ, получаем состояние КУХ со средним значением  $\langle Q^2 \rangle = -1$ . Если ввести дополнительное поле, которое ориентирует магнитные моменты в другой плоскости, получаем состояние с другим средним значением  $\langle Q^2 \rangle$ . Таким образом, задаваемую формулами (30) и (31) величину  $\langle Q^2 \rangle$  следует понимать в смысле «боголюбовского квазисреднего» [24]. В дальнейшем для определенности будем рассматривать только такую ориентацию плоскости квадрупольного упорядочения, которая совпадает с плоскостью YOZ.

Из (15), (16) и (28) получаем выражения для величин  $\tilde{\alpha}_1$  и  $\tilde{\alpha}_2$  в фазе КУХ:

$$\tilde{\alpha}_1 = \frac{1}{2}D - 2\sigma K_0 - \frac{1}{2}(\sigma + \lambda)K_0(\zeta - 1), \quad (32)$$

$$\tilde{\alpha}_2 = -\frac{1}{6}D - \frac{2}{3}\lambda K_0 - \frac{1}{2}(\sigma + \lambda)K_0(\zeta - 1). \quad (33)$$

Соответственно, выражения (17) для энергетических уровней отдельного атома принимают вид

$$\begin{aligned} E^1 &= \frac{1}{3}D - 2\sigma K_0 - \frac{2}{3}\lambda K_0 - (\sigma + \lambda)K_0(\zeta - 1), \\ E^0 &= \frac{1}{3}D + \frac{4}{3}\lambda K_0 + (\sigma + \lambda)K_0(\zeta - 1), \\ E^{-1} &= -\frac{2}{3}D + 2\sigma K_0 - \frac{2}{3}\lambda K_0. \end{aligned} \quad (34)$$

Энергия основного состояния системы

$$E_0 = N \left[ \frac{1}{3}D - \frac{8}{3}K_0 - 2K_0(\zeta - 1) \right]. \quad (35)$$

В работе [8] для модели (3) были определены две ветви спектра спиновых возбуждений в фазе КУХ в пределе низких температур:

$$\begin{aligned} \omega_1(\mathbf{k}) &= \left\{ \left[ 2K_0(\zeta - 1) - 4(\eta K_k - K_0) - D \right] \times \right. \\ &\quad \left. \times \left[ 2K_0(\zeta - 1) - 4(\xi J_k - K_0) - D \right] \right\}^{\frac{1}{2}}, \end{aligned} \quad (36)$$

$$\omega_2(\mathbf{k}) = 4\sqrt{\zeta(K_0 - K_k)(\zeta K_0 - J_k)}. \quad (37)$$

Определение ветвей спектра при конечных температурах целесообразно провести с помощью метода динамической матрицы [23]. При этом следует учесть, что метод динамической матрицы может быть использован непосредственно только для таких фаз, в которых одночастичный гамильтониан (4) диагональный, например, для фазы КУZ. Для фазы КУХ это условие не

выполняется, поскольку компонента ПП  $\langle Q^2 \rangle$  и, следовательно, величина  $\alpha_5$  отличны от нуля. В этом случае необходимо с помощью формул (29) исходный гамильтониан (3) представить в новом базисе, и лишь затем реализовать формализм, предложенный в работе [23]. Не останавливаясь на математических подробностях, приведем результаты расчета ветвей спектра:

$$\begin{aligned} \omega_1(\mathbf{k}) &= \left\{ \left[ 2(\lambda - \sigma)(\eta K_k - K_0) - (\lambda + \sigma)K_0(\zeta - 1) - D \right] \times \right. \\ &\quad \left. \times \left[ 2(\lambda - \sigma)(\xi J_k - K_0) - (\lambda + \sigma)K_0(\zeta - 1) - D \right] \right\}^{\frac{1}{2}}, \end{aligned} \quad (38)$$

$$\omega_2(\mathbf{k}) = 4 \left| \frac{\sigma + \lambda}{2} \right| \sqrt{\zeta(K_0 - K_k)(\zeta K_0 - J_k)}. \quad (39)$$

В пределе низких температур, когда выполняется условие  $\sigma = 0$ ,  $\lambda = -2$ , выражения (38) и (39) полностью согласуются с результатами работы [8].

В том случае, когда в системе реализуется одноподрешеточное упорядочение, смягчение ветвей спектра происходит в центре зоны Бриллюэна, т.е. при условии  $\mathbf{k} = 0$  [25]. Соответственно, условие устойчивости ветви (38) имеет вид

$$\begin{aligned} &\left[ 2(\lambda - \sigma)K_0(\eta - 1) - (\lambda + \sigma)K_0(\zeta - 1) - D \right] \times \\ &\times \left[ 2(\lambda - \sigma)(\xi J_0 - K_0) - (\lambda + \sigma)K_0(\zeta - 1) - D \right] > 0. \end{aligned} \quad (40)$$

При малых значениях константы ОА  $D$  оба множителя в (40) положительны и спектр устойчив. С ростом величины  $D$  в некоторой точке  $D_{C1}(T)$  первый множитель в (40) обращается в нуль, при этом второй множитель остается положительным. Таким образом, при малых значениях величины  $J_0$  (т.е. при выполнении неравенства  $\eta K_0 > \xi J_0$ ) в координатах  $T$ - $D$  граница устойчивости ветви спектра (38) имеет вид

$$D = D_{C1}(T), \quad (41)$$

где критическое значение константы ОА  $D_{C1}(T)$  задается выражением

$$D_{C1}(T) = 2(\lambda - \sigma)K_0(\eta - 1) - (\lambda + \sigma)K_0(\zeta - 1). \quad (42)$$

На границе устойчивости ветвь спектра (38) в длинноволновом пределе, т.е. при условии  $\mathbf{k} \rightarrow 0$ , имеет линейный закон дисперсии. Закон дисперсии ветви спектра (39) при условии  $\mathbf{k} \rightarrow 0$  является линейным при произвольных значениях параметров гамильтониана, при этом выполняется условие  $\omega_2(0) = 0$ . Таким образом, мода этой ветви с нулевым значением волнового вектора  $\mathbf{k}$  является голдстоуновской. Эта мода соответствует вращению плоскости квадрупольного упорядочения как целого вокруг оси OZ.

### 5. Фаза $KY_{<}$

Простой подстановкой можно убедиться, что система уравнений (10)–(12) имеет решение

$$\sin^2 \varphi = \frac{2K_0(\eta-1)(\sigma-\lambda) - 2K_0(\zeta-1)\sigma - D}{[4K_0(\eta-1) - K_0(\zeta-1)](\sigma-\lambda)},$$

$$\chi = 0, \quad \psi = \pi/4. \quad (43)$$

Определяя с помощью матриц Вигнера связь операторов  $S^l, Q^p$  с операторами  $\tilde{S}^l, \tilde{Q}^p$  для случая, когда параметры унитарного преобразования задаются формулами (43), и проводя в полученных выражениях усреднение, находим отличные от нуля компоненты ПП:

$$\langle Q^0 \rangle = \frac{3}{2} \sin^2 \varphi (\sigma - \lambda) + \lambda, \quad \langle Q^{-1} \rangle = \frac{1}{2} \sin^2 \varphi (\lambda - \sigma),$$

$$\langle Q^2 \rangle = \sigma + \frac{1}{2} \sin^2 \varphi (\lambda - \sigma). \quad (44)$$

При нулевой температуре равенства (44) принимают вид

$$\langle Q^0 \rangle = 3 \sin^2 \varphi - 2, \quad \langle Q^{-1} \rangle = -\sin 2\varphi, \quad \langle Q^2 \rangle = -\sin^2 \varphi, \quad (45)$$

где

$$\sin^2 \varphi = \frac{2K_0(\eta-1) - (1/2)D}{4K_0(\eta-1) - K_0(\zeta-1)}. \quad (46)$$

Компоненты ПП (45) соответствуют квадрупольно упорядочению в плоскости  $\mathbf{P}$  (рис. 1), которая перпендикулярна оси  $\alpha$ , расположенной в плоскости  $ZOX$  под углом  $\varphi$  к оси  $Z$ . Соответствующую фазу будем называть  $KY_{<}$ .

Приведем полученное в [8] выражение для энергии основного состояния системы в фазе  $KY_{<}$ :

$$E_0(KY_{<}) = N \left\{ -\frac{2}{3}D - \frac{8}{3}K_0 + \frac{2K_0(\eta-1)[D - 4K_0(\eta-1)]}{4K_0(\eta-1) - K_0(\zeta-1)} \right\}. \quad (47)$$

При изменении параметров гамильтониана ориентация плоскости  $\mathbf{P}$  непрерывно изменяется. При  $\varphi = \pi/2$  фаза  $KY_{<}$  переходит в фазу  $KY_X$ . Таким образом, фазовый переход (ФП) второго рода между фазами  $KY_{<}$  и  $KY_X$  определяется условием

$$\sin^2 \varphi = 1. \quad (48)$$

Определяемое условием (48) выражение для границы между фазами  $KY_{<}$  и  $KY_X$  совпадает с границей устойчивости фазы  $KY_X$ , задаваемой формулой (41).

При условии  $T = 0$  выражение для критического значения  $D_{C1}$  представляется следующим образом:

$$D_{C1}(0) = 2K_0(\zeta-1) - 4K_0(\eta-1). \quad (49)$$

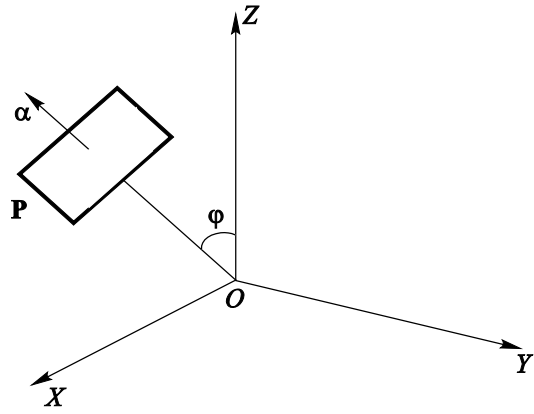


Рис. 1. Ориентация плоскости квадрупольного упорядочения  $\mathbf{P}$  в фазе  $KY_{<}$ .

При  $\varphi = 0$  фаза  $KY_{<}$  переходит в фазу  $KY_Z$ . Следовательно, ФП второго рода между фазами  $KY_{<}$  и  $KY_Z$  определяется условием

$$\varphi = 0. \quad (50)$$

Условие (50) задает второе критическое значение константы  $OA$ :

$$D_{C2}(T) = 2K_0(\eta-1)(\sigma-\lambda) - 2K_0(\zeta-1)\sigma. \quad (51)$$

С учетом условия  $\sigma = 0, \lambda = \langle Q^0 \rangle$ , которое выполняется на границе с фазой  $KY_Z$ , совпадение выражения (51) с выражением (25) для границы устойчивости фазы  $KY_Z$  становится очевидным.

При нулевой температуре условие (51) принимает вид

$$D_{C2}(0) = 4K_0(\eta-1). \quad (52)$$

Фаза  $KY_{<}$  может реализовываться в качестве основного состояния системы только при таких значениях константы  $D$ , которые удовлетворяют условию

$$D_{C1}(0) < D < D_{C2}(0). \quad (53)$$

Из (49), (51) и (53) находим необходимое условие присутствия на фазовой диаграмме (ФД) фазы  $KY_{<}$  в качестве основного состояния:

$$4(\eta-1) > \zeta-1. \quad (54)$$

В том случае, когда условие (54) не выполняется, в системе в качестве основного состояния могут реализовываться только две квадрупольные фазы:  $KY_X$  и  $KY_Z$ .

### 6. Фазовая диаграмма

На рис. 2 в безразмерных координатах  $\tilde{\theta} - \tilde{D}$  ( $\tilde{\theta} = kT/K_0, \tilde{D} = D/K_0$ ) схематически изображена фазовая диаграмма, реализующаяся при выполнении условия (54). Линии 1 и 2 — границы фазы  $KY_{<}$  с фазами  $KY_X$  и  $KY_Z$  соответственно. Это линии ФП второго

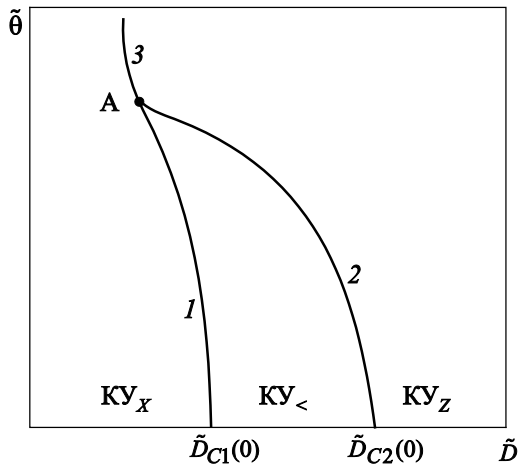


Рис. 2. Фазовая диаграмма, иллюстрирующая переходы между квадрупольными фазами при условии  $D_{C1}(T) < D_{C2}(T)$ .

рода. Линия 3 представляет собой линию ФП первого рода между фазами  $KY_X$  и  $KY_Z$ . Она определяется как линия равенства свободной энергии в обеих фазах. Соответствующие выражения для свободной энергии получены в работах [23] и [26]. Точка А представляет собой тройную точку.

Отметим, что при постоянном увеличении температуры система неизбежно переходит в парамагнитное состояние. Вопрос о границах парамагнитной фазы хорошо изучен в литературе (см., например, [1,10,12,27]), поэтому в настоящей работе на нем останавливаться не будем.

### 7. Обсуждение результатов

Изученная в настоящей работе модель (3) допускает возникновение в системе фазы с неколлинеарной плоскостью квадрупольного упорядочения — фазы  $KY_<$ . Необходимое условие реализации фазы  $KY_<$  задается неравенством  $D_{C1}(T) < D_{C2}(T)$ . В том случае, когда биквадратное обменное взаимодействие является изотропным (частный случай модели (3)), решение системы (7), соответствующее фазе  $KY_<$ , также существует. Однако при условии  $\zeta = \eta = 1$  критические значения констант одноионной анизотропии  $D_{C1}(T)$  и  $D_{C2}(T)$  равны нулю, что делает невозможным возникновение фазы  $KY_<$ . Таким образом, наличие биквадратичного обменного взаимодействия — необходимое условие существования фазы  $KY_<$ . При этом роль констант анизотропии  $\zeta$  и  $\eta$  в формировании фазы  $KY_<$  существенно различается. Остановимся на этом подробнее. Нарушение условия  $\zeta > 1$  в «легкоплоскостном» магнетике делает невозможной фазу  $KY_X$ , что приводит к фазовой диаграмме, на которой в интервале значений константы  $0A < D < D_{C2}$  реализуется фаза  $KY_<$ , а при условии  $D > D_{C2}$  — фаза  $KY_Z$ . Напротив, нару-

шение условия  $\eta > 1$  приводит к тому, что фаза  $KY_<$  в системе не реализуется.

Второе необходимое условие присутствия на ФД фазы  $KY_<$  — предполагаемая в настоящей работе малость обменного взаимодействия по сравнению с БОВ. Например, реализация в системе фазы  $KY_<$  невозможна при выполнении условия  $\xi J_0 > \eta K_0$ .

В заключение отметим, что возможность использования метода унитарного преобразования не ограничена случаем одноосных магнетиков. При построении системы уравнений для параметров  $\phi, \chi, \psi$  условие одноосности гамильтониана не используется [8,18], поэтому метод пригоден для исследования магнетиков произвольной симметрии. При этом получается система уравнений, аналогичная (7). Эти уравнения переходят в уравнения (7) при наложении соответствующих условий на константы гамильтониана (условий одноосности).

Работа выполнена при поддержке Министерством образования и науки, молодежи и спорта Украины (грант № 0112U001739).

1. В.Л. Нагаев, Магнетики со сложными обменными взаимодействиями, Наука, Москва (1988).
2. P. Morin, J. Rouchy, and D. Schmitt, *Phys. Rev. B* **17**, 3684 (1978).
3. K. Hanzawa and T. Kasuya, *J. Phys. Soc. Jpn.* **53**, 1809 (1984).
4. R. Aleonard, P. Morin, and J. Rouchy, *J. Magn. Magn. Mater.* **46**, 233 (1984).
5. В.М. Калита, В.М. Локтев, *ЖЭТФ* **125**, 1149 (2004).
6. В.П. Дьяконов, Э.Е. Зубов, Ф.П. Онуфриева, А.В. Сайко, И.М. Фита, *ЖЭТФ* **93**, 1775 (1987).
7. В.В. Вальков, Б.В. Федосеев, *ФТТ* **32**, 3522 (1990).
8. F.P. Onufrieva and I.P. Shapovalov, *J. Moscov. Phys. Soc.* **1**, 63 (1991).
9. В.М. Локтев, В.С. Островский, *ФНТ* **20**, 983 (1994) [*Low Temp. Phys.* **20**, 775 (1994)].
10. В.М. Калита, В.М. Локтев, *ФТТ* **45**, 1450 (2003).
11. R.R. Levitskii, O.R. Baran, and B.M. Lisnii, *Eur. Phys. J.* **50**, 439 (2006).
12. P.P. Левицкий, О.Р. Баран, *Журн. Физ. Досл.* **11**, 303 (2007).
13. S.A. Zvyagin, J. Wosnitzer, C.D. Batista, M. Tsukamoto, N. Kawashima, J. Krzystek, V.S. Zapf, M. Jaime, N.F. Oliveira, Jr., and A. Paduan-Filho, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 047205 (2007).
14. V.S. Zapf, V.F. Correa, C.D. Batista, T.P. Murphy, E.D. Palm, M. Jaime, S. Tozer, A. Lacerda, and A. Paduan-Filho, *J. Appl. Phys.* **101**, 09E106 (2007).
15. Yu.A. Fridman, O.A. Kosmachev, and Ph.N. Klevets, *J. Magn. Magn. Mater.* **320**, 435 (2008).
16. Ю.А. Фридман, Ф.Н. Клевец, А.П. Войтенко, *ФТТ* **52**, 1316 (2010).
17. И. Шаповалов, *Журн. Физ. Досл.* **3**, 192 (1999).
18. Ф.П. Онуфриева, *ЖЭТФ* **80**, 2372 (1981).
19. Ф.П. Онуфриева, *ФТТ* **23**, 2664 (1981).



20. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Статистическая физика*, ч. 1, Наука, Москва (1976).
21. В.В. Вальков, Г.Н. Мацулева, С.Г. Овчинников, *ФТТ* **31**, 60 (1989).
22. Ю.А. Фридман, О.А. Космачев, Ф.Н. Клевец, *ФНТ* **32**, 289 (2006) [*Low Temp. Phys.* **32**, 214 (2006)].
23. І. Шаповалов, *Укр. Фіз. Журн.* **53**, 653 (2008).
24. С.В. Тябликов, *Методы квантовой теории магнетизма*, Наука, Москва (1965).
25. Р. Блинц, Б. Жэцш, *Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики*, Мир, Москва (1975).
26. І.П. Шаповалов, П.О. Сайко, *Наук. Вісник Ужгородського ун-ту, Серія фізика* **30**, 86 (2011).
27. В.М. Калита, А.Ф. Лозенко, *ФНТ* **24**, 958 (1998) [*Low Temp. Phys.* **24**, 721 (1998)].

## Quadrupole phases and phase transitions in uniaxial magnets with tensor interactions

I.P. Shapovalov

Uniaxial magnets with unity spin, single-ion anisotropy and anisotropic biquadratic exchange interaction in the absence of a magnetic field are investigated. Feasible types of quadrupole ordering in the system are discussed for the case where the anisotropy of biquadratic exchange interaction has the most general form compatible with the axial symmetry. Besides two phases with the stationary planes of quadrupole ordering ( $QO_Z$  and  $QO_X$  phases), there may appear a phase ( $QO_<$  phase) in which the orientation of the plane of quadrupolar order changes continuously as the Hamiltonian parameters are varied. For the  $QO_X$  phase two branches of spin excitations are found, one including the Goldstone mode. The  $QO_<$  phase boundary with the other two quadrupolar phases at finite temperatures are determined, the expression for the  $QO_<-QO_Z$  phases boundary being derived analytically.

PACS: **75.10.-b** General theory and models of magnetic ordering;  
75.30.Gw Magnetic anisotropy.

Keywords: single-ion anisotropy, biquadratic exchange interaction, quadrupolar phase, phase transitions.