

МАГНИТНЫЕ ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ ПЕРВОГО РОДА И МЕТАМАГНЕТИЗМ КВАНТОВОГО ПРОИСХОЖДЕНИЯ

Э.Л.Нагаев

Фазовые переходы в гейзенберговских магнетиках с конкурирующими обменными взаимодействиями могут быть вызваны квантовыми флуктуациями спинов. Из-за квантовых эффектов в них возможны специфическое метамагнитное состояние и долгоживущая наведенная намагниченность.

Обычно магнитные фазовые переходы первого рода (ФП1) объясняют или негейзенберговским обменом (к нему сводится и взаимодействие спинов с решеткой, см., например,¹), или критическими флуктуациями, превращающими переход порядок – беспорядок в кристаллах определенной симметрии в скачкообразный². В этой работе указан новый механизм магнитных ФП1, который должен работать в гейзенберговских магнетиках вблизи границ магнитных фаз. В отличие от указанных выше механизмов он обусловлен квантовой природой спинов и потому невозможен в магнетиках с классически большими спинами. Та же физика, которая ведет к таким фазовым переходам, приводит и к существованию метамагнетизма специфически квантовой природы. Он отличается от обычного метамагнетизма тем, что, во-первых, он вызван не магнитной анизотропией, а изотропным гейзенберговским обменом. Во-вторых, квантовый метамагнетизм характеризуется наличием у кристаллов магнитной памяти: при низких температурах кристалл может оставаться в намагниченном состоянии и после снятия внешнего магнитного поля.

Рассматриваются кристаллы, в которых при изменении параметров конкурирующих обменных взаимодействий происходит изменение типа магнитного упорядочения с ферромагнитного (ФМ) на антиферромагнитное (АФ). Для простоты считается, что магнитные атомы образуют простую кубическую решетку, и что интеграл I_1 обмена между ближайшими соседями положителен, а интеграл I_2 обмена между вторыми по дальности соседями отрицателен. Фурье-компоненты обменного интеграла даются выражением

$$I_{\mathbf{k}} = 2I_1 \left[\sum_i \cos k_i - \frac{l}{2} \sum_{i \neq j} \cos k_i \cos k_j \right], \quad l = \frac{2|I_2|}{I_1}, \quad (1)$$

где \mathbf{k} – волновой вектор в обратных постоянных решетке, $i = x, y, z$.

Стандартная процедура нахождения типа упорядочения при $T = 0$ состоит в том, что в гамильтониане Гейзенберга операторы спина заменяются классическими векторами, и ищется то \mathbf{k} , при котором составленное таким образом выражение для энергии минимально. Тогда условие минимума энергии эквивалентно условию максимума $I_{\mathbf{k}}$ с тем же \mathbf{k} . К тому же критерию типа магнитного упорядочения приводит и теория фазовых переходов: в парамагнитной области при понижении температуры наиболее сильно нарастают флуктуации с тем \mathbf{k} , для которого $I_{\mathbf{k}}$ максимален, и в критической точке устанавливается дальний порядок с этим \mathbf{k} . Соответственно, согласно (1) при малых l должно осуществляться ФМ упорядочение, а $l_c = 0,5$ есть граница между ФМ и слоистой АФ фазой с $\mathbf{k} = (0, 0, \pi) \equiv \mathbf{P}$.

Однако, если учесть квантовую природу спинов, то исследование низкотемпературных и критических свойств приводит к разным положениям границы между фазами. Действительно, в отличие от ФМ состояния, классическое АФ состояние не является собственным состоянием гамильтониана Гейзенберга. Поэтому истинная энергия антиферромагнетика E_{AF} ниже его классической энергии на величину $\sim 1/zS$, где S – спин, z – число ближайших соседей:

$$E_{FM} = -\frac{I_0 S^2}{2}, \quad E_{AF} = -\frac{I_P S}{2} (S + \alpha) \quad \alpha \cong 0, 14. \quad (2)$$

Соответственно, на классической границе фаз $l_c = 0,5$, где $I_0 = I_p$, E_{AF} на ту же величину ниже энергии ФМ состояния E_{FM} . Поэтому и квантовое значение l_q , ограничивающее область стабильности ФМ фазы, должно быть меньше l_c на величину $\sim 1/2S$.

Но нулевые колебания спинов, понижающие энергию АФ состояния по сравнению с энергией ФМ состояния наиболее существенны при $T = 0$. С повышением температуры их относительный вклад в термодинамические величины должен понижаться, так как степень антипараллельной ориентации спинов из разных подрешеток падает. Поэтому должны быть малы и квантовые поправки к критерию, согласно которому в T_c устанавливается структура с максимальным I_k . В относительно грубом приближении молекулярного поля, как видно из выражения для восприимчивости

$$\chi_k \sim [3T - I_k S (S + 1)]^{-1} \quad (3)$$

несмотря на учет квантовой природы спинов, к обсуждаемому критерию такие квантовые поправки отсутствуют вообще. В отличие от энергии (2) согласно (3) спин входит как в T_c для ФМ, так и в T_N для АФ одинаково: в виде комбинации $S(S + 1)$. О малости поправок к классическому критерию свидетельствуют и самые точные результаты высокотемпературных разложений³: T_c для ФМ включает в себя спин в виде комбинации $[S(S + 1) - 0,09]$, т.е. практически так же, как и в приближении молекулярного поля.

Таким образом, хотя в интервале $l_q < l < l_c$ выше T_c при понижении температуры наиболее интенсивно развивается ФМ ближний порядок, существовать при $T = 0$ он не может так как $E_{FM} > E_{AF}$. Но в этом интервале классически неустойчиво и АФ состояние. Поэтому возникает вопрос, не окажется ли оно устойчивым с учетом квантовых эффектов. Чтобы его решить следует вычислить магنونные частоты ω_k во втором порядке по $1/S$. Расцепляя тернарные члены в магнотном гамильтониане на произведения пар операторов и средних от них по основному состоянию и проводя боголюбовское (u, v) -преобразование, получаем

$$\omega_k = \sqrt{B_k^2 - C_k^2} \quad (4)$$

$$B_k = 2I_1 S [1 - \cos k_x - \cos k_y + l (1 + \cos k_x \cos k_y) + \frac{1}{S} (v_{100} - v_{000}) (2 - \cos k_x - \cos k_y) - \frac{1}{S} (v_{110} - v_{000}) (1 - \cos k_x \cos k_y) + \frac{1}{S} (v_{0'00} - \mu_{001}) - \frac{2I}{S} (v_{000} - \mu_{110})],$$

$$C_k = 2I_1 S \cos k_z \{l (\cos k_x + \cos k_y) [1 - \frac{1}{S} (v_{000} - \mu_{110})] - 1 + \frac{1}{S} (v_{000} - \mu_{001})\},$$

$$v_{pqr} = \frac{1}{2N} \sum \left(\frac{B_k}{\omega_k} - 1 \right) \cos^p k_x \cos^q k_y \cos^r k_z, \quad \mu_{pqr} = \frac{1}{2N} \sum \frac{C_k}{\omega_k} \cos^p k_x \cos^q k_y \cos^r k_z.$$

Как следует из (4), АФ состояние, по крайней мере, устойчиво относительно малых флуктуаций и при $l < l_c$, так как частоты остаются вещественными до $l_q = 0,5 - \frac{0,14}{S}$. Представляется крайне маловероятным, чтобы у границы АФ и ФМ фаз какое-то другое состояние имело еще более низкую энергию, чем АФ. Поэтому естественно заключить, что в классически запрещенном интервале от l_q до l_c должно осуществляться специфически квантовое АФ упорядочение. При малых спинах ширина этого интервала достаточно велика — она сравнима с интервалом устойчивости ФМ фазы.

Тот факт, что в этом интервале ближний порядок в парамагнитной области иного типа, чем дальний при $T = 0$ (первый ФМ, второй АФ), влечет за собой необходимость скачкообразного изменения типа магнитного порядка. Имеются две возможности. 1) При понижении температуры происходит сначала фазовый переход второго рода из парамагнитного в ФМ состоя-

ние сопровождаемый переходом первого рода из ФМ в АФ состояние. 2) Непосредственно происходит ФП1 из парамагнитного в антиферромагнитное состояние, т.е. ФП относится к типу „порядок — чужой беспорядок”. До сих пор была доказана возможность таких ФП только в негејзенберговских магнетиках¹.

Существенно, что в интервале $l_q < l < l_c$ ФМ упорядочению отвечает локальный минимум энергии. Это следует из того, что магнанные частоты $\tilde{\omega}_k = I_0 - I_k$ согласно (1) в нем неотрицательны. Из этого следует, что внешнее магнитное поле должно вызывать скачкообразный переход из АФ в ФМ состояние, причем величина необходимого для этого поля тем меньше, чем ближе l к l_q . Если поле убрать, то при $T \rightarrow 0$ кристалл должен сколь угодно долго оставаться в метастабильном ФМ состоянии. Изотропные метамагнетики, в принципе, возможны также при гејзенберговском обмене (1), но они обладают магнитной памятью.

Что касается экспериментального обнаружения ФП1 квантовой природы, то их следует искать в АФ с малыми спинами и с достаточно сильным ФМ обменом, конкурирующим с АФ обменом. О сильной их конкуренции свидетельствует большой сдвиг парамагнитной температуры Кюри Θ от $(-T_N)$ в сторону положительных значений. У многих АФ Θ оказывается даже положительной. Из магнетиков с малыми спинами к числу таких материалов относятся, например, CoCl_2 , $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, NiBr_2 , MnF_3 , UP , UP_2 и т.д. Приблизиться к границе между АФ и ФМ фазами можно, также, прикладывая к кристаллам давление.

Автор признателен В.Л.Покровскому за обсуждение работы.

Литература

1. Нагаев Э.Л. УФН, 1982, 136, 61.
2. Бразовский С.А., Дзялошинский И.Е. Письма в ЖЭТФ, 1975, 21, 360; *Bak P., Krinsky S., Mukamel D.* Phys. Rev. Lett., 1976, 36, 52.
3. *Rushbrooke G., Wood P. J.* Molec. Phys., 1958, 1, 257.

Поступила в редакцию

5 февраля 1984 г.

После доработки

26 марта 1984 г.