Письма в ЖЭТФ, том 61, вып.2, стр.137 - 141

СМЕШИВАНИЕ СПИНОВОЙ И КВАДРУПОЛЬНОЙ ПОДСИСТЕМ В МАГНИТНОМ ПОЛЕ И АНТИФЕРРОКВАДРУПОЛЬНЫЙ ПЕРЕХОД В CeB_6

И.Ю.Данилов, С.В.Малеев[1)]

Санкт-Петербургский институт ядерной физики

188350 г.Гатчина, Россия

Поступила в редакцию 26 декабря 1994 г.

Показано, что в магнитном поле возникает смешивание антиферромагнитной и антиферроквадрупольной подсистем. В результате с ростом магнитного поля увеличивается наибольшая из температур перехода. Этим объясняется увеличение температуры антиферроквадрупольного перехода с ростом магнитного поля в CeB_6.

1. Согласно [1–3], в CeB_6 в нулевом магнитном поле имеется два фазовых перехода в антиферроквадрупольное (AFQ) и антиферромагнитное (AF) состояния при температурах $T_{Q0} = 3,2$ и $T_{N0} = 2,4$ K, соответственно. При этом температура AFQ перехода T_Q увеличивается с ростом магнитного поля. Подобное поведение фазового перехода не может не вызвать удивления. Действительно, магнитное поле стремится ориентировать спины в одном направлении и, следовательно, должно подавлять как AFQ, так и AF флуктуации. Поэтому следовало бы ожидать понижения температуры AFQ перехода с ростом магнитного поля. Это позволяет нам говорить об аномальном характере фазового перехода в AFQ состояние CeB_6.

Основная идея нашей работы следующая. В нулевом магнитном поле в приближении хаотических фаз (молекулярного поля) спиновая и квадрупольная подсистемы не независимы, поскольку корреляторы $\langle J^\alpha, Q^{\beta\gamma}\rangle$ равны нулю. Здесь $\mathbf{J}$ – полный момент иона и $Q^{\alpha\beta}$ – оператор квадрупольного момента:

$$Q^{\alpha\beta} = \frac{1}{2}(J^\alpha J^\beta + J^\beta J^\alpha) - \frac{J(J+1)}{3} \qquad (1)$$

Однако при включении поля эти корреляторы становятся отличными от нуля и происходит смешивание AFQ и AF подсистем. В результате наибольшая из температур перехода увеличивается, а наименьшая понижается. Отметим еще, что переход в AFQ состояние является переходом первого рода. Однако, как показано ниже, для CeB_6 этот переход близок ко второму и поэтому наше качественное рассмотрение справедливо.

В CeB_6 ионы Ce образуют простую кубическую решетку. Их полный момент $J = 5/2$, и в кристаллическом поле основным состоянием является квартет Γ_8. Энергия дублета Γ_7 равна 46 мэВ, и он практически не влияет на свойства низкотемпературных фазовых переходов [1–3].

В кубическом поле обменное квадрупольное взаимодействие соседних ионов представимо в виде двух слагаемых, соответствующих компонентам квадрупольного момента, преобразующимся по представлениям Γ_3 ($O_2^{(0)} = \sqrt{3/2}Q^{zz}$; $O_2^{(2)} = \sqrt{1/2}(Q^{xx} - Q^{yy})$) и Γ_5 (Q^{xy}, Q^{xz}, Q^{yz}). В работе [4], посвященной

[1)]e-mail: maleyev@lnpi.spb.su.

магнитоупругим свойствам CeB_6, делается вывод о малости взаимодействия, соответствующего представлению Γ_5. Поэтому мы им пренебрегаем.

В результате запишем гамильтониан системы в виде

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2}\sum_{l\neq l'} V_{ll'}(O_{2,l}^{(0)}O_{2,l'}^{(0)} + O_{2,l}^{(2)}O_{2,l'}^{(2)}) + \frac{1}{2}\sum_{l\neq l'} I_{ll'}\mathbf{J}_l\mathbf{J}_{l'} - g_J\mu H\sum_l J_l^z, \quad (2)$$

где $V_{ll'}$, $I_{ll'}$ – обменные интегралы квадруполь-квадрупольного и спин-спинового взаимодействия соответственно, а операторы $\mathbf{J}$ и Q действуют в подпространстве квадруплета Γ_8. Для $V_{l,l'}$ и $I_{l,l'}$ мы будем использовать приближение ближайших соседей и тогда в импульсном пространстве их можно записать как:

$$V_{\mathbf{k}} = 2V(\cos k_x + \cos k_y + \cos k_z),$$
$$I_{\mathbf{k}} = 2I(\cos k_x + \cos k_y + \cos k_z),$$

где $V > 0$, $I > 0$.

Введем функции Грина статического приближения согласно [5–7]:

$$\begin{aligned} G_{ll'} &= \int_0^{1/T} \langle J_l^z(\tau)J_{l'}^z(0)\rangle d\tau - \frac{1}{T}\langle J_l^z\rangle\langle J_{l'}^z\rangle, \\ F_{ll'}^{\lambda} &= \int_0^{1/T} \langle O_{2,l}^{\lambda}(\tau)J_{l'}^z(0)\rangle d\tau - \frac{1}{T}\langle O_{2,l}^{\lambda}\rangle\langle J_{l'}^z\rangle, \\ K_{2,ll'}^{\lambda} &= \int_0^{1/T} \langle O_{2,l}^{\lambda}(\tau)\rangle\langle O_{2,l'}^{\lambda}(0)\rangle d\tau - \frac{1}{T}\langle O_{2,l}^{\lambda}\rangle\langle O_{2,l'}^{\lambda}\rangle, \end{aligned} \quad (3)$$

где $\lambda = 0, 2$. Очевидно, функция $F^{(0)}$ отлична от нуля только в ненулевом магнитном поле ($F^{(0)} \sim h/T$, $h = g_J\mu H$ при $h \ll T$), а $F^{(2)}$ тождественно равна нулю.

2. Напишем систему уравнений для функций Грина в приближении хаотических фаз в парамагнитной области:

$$\begin{aligned} F^{(0)} &= F_0^{(0)} - G_0\frac{I_{\mathbf{k}}}{T}F^{(0)} - F_0^{(0)}\frac{V_{\mathbf{k}}}{T}K^{(0)}, \\ K^{(0)} &= K_0^{(0)} - K_0^{(0)}\frac{V_{\mathbf{k}}}{T}K^{(0)} - F_0^{(0)}\frac{I_{\mathbf{k}}}{T}F^{(0)}, \\ K^{(2)} &= K_0^{(2)} - K_0^{(2)}\frac{V_{\mathbf{k}}}{T}K^{(2)}, \end{aligned} \quad (4)$$

где $K_0^{(0)}$, $K_0^{(2)}$, $F_0^{(0)}$ и G_0 – одноузельные функции [5, 6, 8]. Поскольку температура AFQ перехода выше температуры AF перехода, то мы рассматриваем только уравнения для $K^{(0)}$ и $K^{(2)}$ функций Грина. Уравнения для этих функций не включают в себя функций Грина, составленных из других компонент квадрупольного момента и спина, кроме учтенных в определениях (3). Отметим также, что все наши результаты непосредственно переносятся на случай $T_N > T_Q$, с соответствующей заменой $K^{(0)}$ и $K^{(2)}$ на функцию G и функцию, составленную из J^x, J^y компонент спина.

Решение системы (4) имеет вид

$$
\begin{aligned}
K^{(0)} &= \frac{K_0^{(0)} - \dfrac{I_{\mathbf{k}}(F_0^{(0)})^2}{T + I_{\mathbf{k}} G_0}}{1 + \dfrac{V_{\mathbf{k}}}{T} K_0^{(0)} - \dfrac{V_{\mathbf{k}} I_{\mathbf{k}}}{T} \dfrac{(F_0^{(0)})^2}{T + I_{\mathbf{k}} G_0}}, \\
K^{(2)} &= \frac{K_0^{(2)}}{1 + \dfrac{V_{\mathbf{k}}}{T} K_0^{(2)}},
\end{aligned}
\qquad (5)
$$

Здесь нули знаменателя определяют точки фазового перехода. Очевидно, что если таких точек несколько, то температурой перехода в AFQ состояние будет та, которая выше.

В случае нулевого магнитного поля $F^{(0)} = 0$, и AFQ переход происходит при температуре

$$T_{Q0} = -V_{\mathbf{k}_0} K_0^{(0)} = -V_{\mathbf{k}_0} K_0^{(2)} = 74V,$$

где $k_0 = (1/2, 1/2, 1/2)$. Здесь $K_0^{(0)}$ и $K_0^{(2)}$ вычислены усреднением по квадруплету Γ_8. Аналогично можно получить выражение для температуры AF перехода:

$$T_{N0} = -I_{\mathbf{k}_0} G_0 = \frac{35}{2} I.$$

Если мы не учитываем взаимодействие с AF подсистемой ($I = 0$) и полагаем $h \ll T$, то фазовые переходы в подсистемах 0 и 2 происходят при температурах

$$
\begin{aligned}
T_Q^{(0)} &= -V_{\mathbf{k}_0} K_0^{(0)} = T_{Q0}\left(1 + A \frac{h^2}{T_{Q0}^2}\right) \\
T_Q^{(2)} &= -V_{\mathbf{k}_0} K_0^{(2)} = T_{Q0}\left(1 - A \frac{h^2}{T_{Q0}^2}\right),
\end{aligned}
\qquad (6)
$$

где постоянная

$$A = \frac{\langle (O_2^{(0)})^2 (J^{z2} - \frac{J(J+1)}{3}) \rangle}{8 K_0^{(0)}}$$

вычислена по основному состоянию в нулевом магнитном поле. Из уравнений (6) видно, что магнитное поле, нарушающее кубическую симметрию системы, приводит к различным температурам перехода для двух компонент квадрупольного момента.

В нашем случае основного состояния Γ_8 и $J = 5/2$ мы имеем $A = 40/111$, и T_Q^0, определяющая температуру перехода растет с увеличением магнитного поля. Для сравнения, в случае основного состояния Γ_8 и $J = \frac{3}{2}$ мы имели бы $A = 0$ и зависящая от поля поправка к температуре была бы пропорциональна $(h/T)^4$.

При учете смешивания между AFQ и AF подсистемами в магнитном поле имеем

$$
\begin{aligned}
T_Q^0 &= -V_{\mathbf{k}_0} K_0^{(0)} + (F^{(0)})^2 \frac{V_{\mathbf{k}_0} I_{\mathbf{k}_0}}{T + I_{\mathbf{k}_0} G_0}, \\
T_Q^2 &= -V_{\mathbf{k}_0} K_0^{(2)}.
\end{aligned}
\qquad (7)
$$

Разлагая выражения (7) в ряд по h/T, получим:

$$\begin{aligned} T_Q^0 &= T_{Q0}\left[(1+(A+\frac{K^{(0)}}{G_0}\frac{T_{N0}}{T_{Q0}-T_{N0}})\right] = T_{Q0}\left[1+(\frac{40}{111}+\frac{296}{105}\frac{T_{N0}}{T_{Q0}-T_{N0}})\frac{h^2}{T_{Q0}^2}\right] = \\ &= T_{Q0}\left[1+(0.36+\frac{2.82T_{N0}}{T_{Q0}-T_{N0}})\frac{h^2}{T_{Q0}^2}\right], \\ T_Q^2 &= T_{Q0}\left[1-A\frac{h^2}{T_{Q0}^2}\right] = T_{Q0}(1-\frac{40}{111}\frac{h^2}{T^2}) = T_{Q0}(1-0.36\frac{h^2}{T_{Q0}}). \end{aligned} \tag{8}$$

Таким образом мы видим, что учет смешивания AFQ и AF флуктуаций привел к значительному усилению эффекта увеличения температуры перехода с ростом магнитного поля.

Следует отметить, что реально AF переход в CeB_6 наблюдается не при $\mathbf{k}=\mathbf{k}_0$, а ему соответствует звезда векторов (0,1/4,1/4), (1/2,1/4,1/4), (0,1/4,-1/4), (1/2,1/4,-1/4) [1]. Это означает, во-первых, что AF взаимодействие сложнее, чем взаимодействие ближайших соседей и, во-вторых, ниже T_Q нужно учитывать наличие дальнего AFQ упорядочения. Анализ этих вопросов будет предметом следующей публикации [9]. С учетом этих усложнений в (8) вместо T_{N0} стоит некая эффективная $\tilde{T}_{N0}$, и отношение $\tilde{T}_{N0}/(T_{Q0}-\tilde{T}_{N0})$ оказывается порядка единицы. Несмотря на это, эффект смешивания каналов остается определяющим из-за относительно большого численного коэффицента.

Как уже отмечалось, и в случае $T_Q < T_N$ можно показать, что смешивание AFQ и AF подсистем в магнитном поле приводит к росту температуры AF перехода с возрастанием магнитного поля.

3. Наш анализ смешивания подсистем качественно справедлив, если переход в AFQ состояние является переходом первого рода, близким ко второму. Мы сейчас продемонстрируем, что это действительно так. Используя преобразование Стратоновича-Хаббарда, получим эффективный гамильтониан Ландау-Гинзбурга для AFQ подсистемы в случае нулевого магнитного поля:

$$\begin{aligned} H &= \frac{1}{2}\sum_k(\frac{3T}{37V_{\mathbf{k}}}+1)(h^{\mathbf{k}_0}h_0^{-\mathbf{k}}+h_2^{\mathbf{k}}h_2^{-\mathbf{k}})+ \\ &+\sum_{\mathbf{k}_1+\mathbf{k}_2+\mathbf{k}_3=0}\frac{40}{333}\sqrt{\frac{3}{2}}(h_0^{\mathbf{k}_1}h_0^{\mathbf{k}_2}h_0^{\mathbf{k}_3}-3h_0^{\mathbf{k}_1}h_2^{\mathbf{k}_2}h_2^{\mathbf{k}_3})+ \\ &+\frac{6263}{2592}(\frac{3}{37})^{\frac{3}{2}}\sum_{\mathbf{k}_1+\mathbf{k}_2+\mathbf{k}_3+\mathbf{k}_4=0}(h_0^{\mathbf{k}_1}h_0^{\mathbf{k}_2}h_0^{\mathbf{k}_3}h_0^{\mathbf{k}_4}+2h_0^{\mathbf{k}_1}h_0^{\mathbf{k}_2}h_2^{\mathbf{k}_3}h_2^{\mathbf{k}_4}+h_2^{\mathbf{k}_1}h_2^{\mathbf{k}_2}h_2^{\mathbf{k}_3}h_2^{\mathbf{k}_4}), \end{aligned} \tag{9}$$

где h_0, h_2 - вспомогательные поля, нормированные таким образом, чтобы их функция Грина g_0 была равна $\tau^{-1}+k^2/6$, где $\tau=(T-T_Q)/T_Q$. В случае квартета Γ_8 и $J=3/2$ множитель при слагаемом третьего порядка равен нулю и мы имеем переход второго рода. В нашем случае несложные вычисления приводят к следующему выражению для функции Грина g с учетом первой трехчастичной поправки:

$$g^{-1}=g_0^{-1}+\Sigma=\tau+\frac{k^2}{6}+\frac{4800}{50653}\frac{\sqrt{6}}{\pi}\frac{1}{\sqrt{\tau}}=\tau+\frac{k^2}{6}+\frac{0,074}{\sqrt{\tau}}, \tag{10}$$

отсюда видно, что этой поправкой можно пренебречь, если $\tau > 0,18$, то есть действительно наш переход есть переход первого рода, близкий ко второму.

4. В заключение еще раз сформулируем основные результаты работы. Аномальное поведение антиферроквадрупольного фазового перехода CeB_6 в магнитном поле удается качественно объяснить за счет учета эффекта смешивания спиновой и квадрупольной подсистем в магнитном поле. Антиферроквадрупольный переход оказывается переходом первого рода, близким ко второму.

Авторы благодарят Д.Н.Аристова, С.Л.Гинзбурга и А.Г.Яшенкина за ценные обсуждения. Один из авторов (С.М.) благодарен проф. Ж.Росса-Миньону, обратившему его внимание на проблему CeB_6. Работа была выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 94-02-05649-а) и Международного Научного Фонда (грант R3Y000).

---

1. J.M.Effantin, J.Rossat-Mignod, P.Burlet et al., J. Magn. Magn. Mat. **47 – 48**, 145 (1985).
2. M.Loewenhaupt, J.M.Carpenter, C.-K.Loong et al., J. Magn. Magn. Mat. **52**, 245 (1985).
3. Y.Peysson, C.Ayache , J.Rossat-Mignod et al., J. de Phys. **47**, 113 (1986).
4. B.Luthi, Z. Phys. B-Condensed Matter. **58**, 31 (1984).
5. В.Г.Вакс, А.И.Ларкин, С.А.Пикин, ЖЭТФ **58**, 281 (1967).
6. В.Г.Вакс, А.И.Ларкин, С.А.Пикин, ЖЭТФ **58**, 1089 (1967).
7. Ю.А.Изюмов, Ф.А.Кассан-Оглы, Ю.Н.Скрябин, Полевые методы в теории ферромагнетизма, М.: Наука, 1974.
8. И.Ю.Данилов, С.В.Малеев. Будет опубликована