

00

Моделирование намагниченности пирохлора $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ с учетом квадрупольных взаимодействий между ионами Pr^{3+}

© В.В. Клековкина, Б.З. Малкин

Казанский федеральный университет,
Казань, Россия

e-mail: vera.klekovkina@kpfu.ru

Поступила в редакцию 22.5.2026 г.

В окончательной редакции 15.06.2026 г.

Принята к публикации 30.06.2026 г.

В работе получен параметризованный гамильтониан квадрупольного взаимодействия между редкоземельными ионами в кристаллах со структурой пирохлора. Выполнены расчеты температурной зависимости статической магнитной восприимчивости и полевых зависимостей намагниченности монокристалла $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ при различных температурах.

Ключевые слова: редкоземельные пирохлоры, цирконат празеодима, намагниченность, квадрупольные взаимодействия.

DOI: 10.61011/OS.2026.10.63933.31-26

Введение

Редкоземельные (РЗ) кристаллы со структурой пирохлора (в частности, цирконаты $\text{R}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$, где R — РЗ-ион) являются одними из наиболее активно исследуемых фрустрированных магнетиков на протяжении последних тридцати лет. Сохраняющийся активный интерес к исследованиям геометрически фрустрированных спиновых систем с конкурирующими магнитными взаимодействиями между парамагнитными ионами, в частности в кристаллах РЗ-диэлектриков со структурой пирохлора, был стимулирован работой [1] нобелевского лауреата Ф. Андерсона, в которой была отмечена возможность существования в таких системах новых необычных квантовых фаз. Тем не менее построение микроскопических моделей, описывающих свойства этого класса соединений в парамагнитной фазе, не завершено до настоящего времени.

Несмотря на то, что к настоящему времени выполнены экспериментальные исследования $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ с привлечением практически всего арсенала методов измерений физических характеристик конденсированных сред, не существует теоретической модели, позволяющей воспроизвести экспериментальные данные по намагниченности этого кристалла при температурах ниже 10 К. Этот факт отмечался ранее в работе [2]. В настоящее время основное состояние $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ при низких температурах получило название спин-орбитальной квантовой спиновой жидкости [3]. В формировании этого коллективного квантового состояния системы локализованных $4f$ -электронов и кристаллической решетки доминирующую роль играют спин-орбитальное взаимодействие, электрон-фононное и электрон-деформационное взаимодействия, обменное и мультипольные (квадрупольные) взаимодействия между ионами Pr^{3+} .

Специфические магнитные свойства различных РЗ-пирохлоров определяются энергетическим спектром РЗ-ионов в электрическом кристаллическом поле, структурой волновых функций нижних подуровней основного мультиплета и параметрами межйонных взаимодействий. Как правило, при моделировании магнитных свойств РЗ-пирохлоров учитываются диполь-дипольное и анизотропное обменное взаимодействия между РЗ-ионами. Анизотропное обменное взаимодействие (сверх-обменное или косвенное) индуцируется виртуальными процессами переброса электронов между спин-орбиталями ионов с незаполненными электронными оболочками через промежуточные состояния лигандов. Аналогичные процессы индуцируют и взаимодействия между электрическими мультипольными моментами $4f$ -электронов, локализованных на соседних РЗ-ионах. Заметим, что энергией электростатических взаимодействий между электрическими мультиполями РЗ-ионов можно практически всегда пренебречь, однако энергия косвенных взаимодействий может достигать величины порядка 1 К [4]. Различие между результатами моделирования намагниченности $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ и экспериментальными данными может быть обусловлено пренебрежением в расчетах мультипольными взаимодействиями между ионами Pr^{3+} (в частности, между квадрупольными моментами).

Кристаллическая структура

Кристаллическая решетка цирконата празеодима относится к пространственной группе симметрии $Fd\bar{3}m$ (O_h^7 , №227) — кубическая гранецентрированная решетка Браве с векторами трансляций $\mathbf{a}_1 = (0, 1, 1)$, $\mathbf{a}_2 = (1, 0, 1)$, $\mathbf{a}_3 = (1, 1, 0)$ в единицах $a/2$, где a — постоянная решетки, $a = 10.7099 \text{ \AA}$ [5].

Ионы Pr^{3+} находятся в позиции Вайкоффа 16d (1/8, 1/8, 1/8), ионы Zr^{4+} — в позиции 16c (5/8, 5/8, 5/8), ионы O^{2-} — в позициях 8b (0, 0, 0) и $48f(x - 5/8, 1/2, 1/2)$, где $x = 0.3354$ [5]. Локальная точечная группа симметрии ионов Pr^{3+} тригональная D_{3d} . Ионы Pr^{3+} образуют сетку соединенных вершинами тетраэдров. Таким образом, каждый ион Pr^{3+} имеет шесть ближайших ионов Pr^{3+} . Радиус-векторы четырех магнитно неэквивалентных ионов Pr^{3+} в элементарной ячейке в кристаллографической декартовой системе координат с началом отсчета на ионе кислорода в позиции 8b равны $\mathbf{r}_1 = (1, 1, 1)$, $\mathbf{r}_2 = (-1, -1, 1)$, $\mathbf{r}_3 = (-1, 1, -1)$, $\mathbf{r}_4 = (1, -1, -1)$ (в единицах $a/8$). Расстояние между ближайшими ионами Pr^{3+} равно $a/2\sqrt{2} = 3.7865 \text{ \AA}$. Расстояния между ионами Pr^{3+} и ближайшими лигандами (ионами O^{2-}) равны $\frac{\sqrt{3}a}{8} = 2.3188 \text{ \AA}$ (два иона в позициях 8b) и $\frac{\sqrt{((4-8x)^2+2)a}}{8} = 2.5869 \text{ \AA}$ (шесть ионов в позициях 48f).

Ниже операторы, действующие на волновые функции электронной оболочки $4f^2$ ионов Pr^{3+} записываются в локальных системах координат (X_i, Y_i, Z_i) , $i = 1 - 4$, в которых оси Z_i параллельны $\mathbf{r}_i$ (направлены вдоль соответствующих тригональных осей симметрии кристалла), и оси X_i лежат в плоскостях, содержащих $\mathbf{r}_i$ (тригональную C_3 и тетрагональную C_4 оси симметрии). Матрицы поворота из кристаллографической системы координат в локальные приведены в работе [6].

Одночастичные взаимодействия

Магнитные свойства $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$, являющегося магнитным диэлектриком, определяются прежде всего спектром возбуждений незаполненной электронной $4f^2$ -оболочки иона Pr^{3+} в кристаллическом поле. Гамильтониан иона Pr^{3+} в кристалле $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ имеет вид

$$H_0 = H_{\text{FI}} + H_{\text{CF}}. \quad (1)$$

Здесь H_{FI} — стандартный гамильтониан свободного иона Pr^{3+} [7], действующий в полном пространстве волновых функций основной электронной конфигурации $4f^2$ с размерностью 91:

$$H_{\text{FI}} = \xi \sum_k l_k s_k + \alpha L^2 + \beta \hat{G}(G_2) + \gamma \hat{G}(G_7) + \sum_q (F^q \hat{f}_q + P^q \hat{p}_q + M^q \hat{m}_q), \quad (2)$$

где $\mathbf{l}_k$ и $\mathbf{s}_k$ — орбитальный и спиновый моменты k -го электрона, $L = \sum_k l_k$, явный вид остальных операторов приведен в литературе (см. ссылки в [7]). Расчеты были выполнены со следующими значениями параметров гамильтониана H_{FI} : $F^2 = 68979$, $F^4 = 50619$, $F^6 = 33276$, $\xi = 750$, $\alpha = 23$, $\beta = -637$, $\gamma = 1370$, $P^2 = 220$, $P^4 = 165$, $P^6 = 110$, $M^0 = 2$, $M^2 = 1.12$, $M^4 = 0.76 \text{ (cm}^{-1}\text{)}$.

Гамильтониан H_{CF} взаимодействия иона Pr^{3+} с кристаллическим полем симметрии D_{3d} , записанный в

локальной системе координат, определяется шестью независимыми и отличными от нуля действительными параметрами кристаллического поля B_p^k :

$$H_{\text{CF}} = B_2^0 O_2^0 + B_4^0 O_4^0 + B_4^3 O_4^3 + B_6^0 O_6^0 + B_6^3 O_6^3 + B_6^6 O_6^6, \quad (3)$$

где O_p^k — линейные комбинации сферических тензорных операторов [8]. Основной мультиплет $^3H_4$ иона Pr^{3+} в тригональном кристаллическом поле расщепляется на 3 дублета Γ_3 и 3 синглета $2\Gamma_1 + \Gamma_2$.

Диагонализация гамильтониана H_0 позволяет получить информацию об энергетическом спектре иона Pr^{3+} в кристалле $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ и структуре собственных волновых функций. Расчеты были выполнены со следующими значениями параметров гамильтониана H_{CF} : $B_2^0 = 157$, $B_4^0 = 428$, $B_4^3 = -4335$, $B_6^0 = 79.4$, $B_6^3 = 1140$, $B_6^6 = 1235$, которые были получены в работе [9]. Вычисленный путем диагонализации гамильтониана H_0 с заданными выше параметрами энергетический спектр согласуется с экспериментальными данными [10]. Основное состояние иона Pr^{3+} — некрамерсовский дублет, волновые функции преобразуются по неприводимому представлению Γ_3 . Первое возбужденное состояние (синглет Γ_2) имеет энергию $\sim 110 \text{ К}$. Поэтому в литературе моделирование магнитных свойств цирконата празеодима при низких температурах, как правило, выполняется на основе эффективного спин-гамильтониана, действующего в пространстве состояний основного электронного дублета.

При рассмотрении характеристик кристалла $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ во внешнем постоянном магнитном поле $\mathbf{B}$ оператор Гамильтона иона Pr^{3+} в подрешетке i содержит дополнительное слагаемое (зеemannовская энергия):

$$H_Z(i) = -\boldsymbol{\mu} \mathbf{B}(i), \quad (4)$$

где $\boldsymbol{\mu} = -\mu_B(k\mathbf{L} + 2\mathbf{S})$ — оператор магнитного момента иона Pr^{3+} (μ_B — магнетон Бора, k — фактор редукции орбитального момента, $\mathbf{S} = \sum_k \mathbf{s}_k$). Магнитное поле $\mathbf{B}(i)$, действующее на ионы Pr^{3+} в подрешетке i , включает внешнее приложенное поле $\mathbf{B}_0$ и размагничивающее поле $\mathbf{B}_D$:

$$\mathbf{B}(i) = \mathbf{B}_0 - \mathbf{B}_D. \quad (5)$$

В настоящей работе рассматривались однородные размагничивающие поля, параллельные внешнему полю,

$$\mathbf{B}_D = \frac{4\pi N_D}{3vB^2} \sum_{i=1}^4 (\mathbf{m}(i) \cdot \mathbf{B}) \mathbf{B}, \quad (6)$$

где N_D — фактор размагничивания, $v = a^3/4$ — объем элементарной ячейки, $\mathbf{m}(i) = \langle \boldsymbol{\mu} \rangle(i)$ — средний магнитный момент иона Pr^{3+} , принадлежащего подрешетке с номером i .

Вычисленное значение продольного g -фактора основного дублета ($g_{\parallel} = 4.75$) близко к экспериментальному значению 4.78 [11,12], которое было получено для ионов Pr^{3+} в кристалле $\text{Pr}_2\text{Hf}_2\text{O}_7$. Магнитные дипольные взаимодействия между ионами Pr^{3+} могут быть описаны моделью Изинга, $g_{\perp} = 0$.

Двухчастичные взаимодействия

Гамильтониан диполь-дипольного взаимодействия между ионами Pr^{3+} с номерами i и j имеет вид

$$H_{\text{dd}}(i, j) = \frac{\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j}{r_{ij}^3} - \frac{3(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5}, \quad (7)$$

где $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$ — радиус-вектор, определяющий относительное положение ионов i и j , $\mathbf{r}_i$ — радиус-вектор иона с номером i . Диполь-дипольное взаимодействие медленно убывает с увеличением расстояния между ионами (как $\sim r_{ij}^{-3}$), поэтому диполь-дипольное взаимодействие должно учитываться между всеми ионами Pr^{3+} .

В настоящей работе использовался билинейный по операторам магнитных моментов взаимодействующих ионов гамильтониан обменного взаимодействия общего вида, допускаемого симметрией кристаллической решетки, содержащий четыре независимых параметра обменного взаимодействия:

$$\begin{aligned} H_{\text{exch}}(i, j) = & -\lambda_{\parallel}(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})/(r_{ij})^2 \\ & -\lambda_{\perp 1}(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{r}_{ij}^+)(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{r}_{ij}^+)/(r_{ij}^+)^2 \\ & -\lambda_{\perp 2}(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{R}_{ij})(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{R}_{ij})/(R_{ij})^2 \\ & -\lambda_{\text{DM}}\mathbf{R}_{ij} \cdot [\mathbf{m}_i \times \mathbf{m}_j]/R_{ij}, \end{aligned} \quad (8)$$

где $\mathbf{r}_{ij}^+ = \mathbf{r}_i + \mathbf{r}_j$, $\mathbf{R}_{ij} = \mathbf{r}_i \times \mathbf{r}_j$. Первые три слагаемых соответствуют симметричному анизотропному обмену, последнее антисимметричное слагаемое аналогично взаимодействию Дзялошинского—Мории [13–16], вектор $\mathbf{R}_{ij}$ коллинеарен вектору Дзялошинского, микроскопическая формула для которого была выведена в работе [17].

Квадрупольные степени свободы в исследованиях РЗ-пирохлоров впервые упоминаются в работах [18–20], в которых оператор Гамильтона квадрупольного взаимодействия был записан в пространстве волновых функций основного некрамерсовского дублета РЗ-иона в кристаллическом поле симметрии D_{3d} (используя матрицы Паули). В общем случае гамильтониан квадрупольного взаимодействия должен быть записан через компоненты оператора электрического квадрупольного момента. В общем виде гамильтониан квадрупольных взаимодействий, записанный через сферические тензорные операторы второго ранга, был представлен в работах [21,22], однако соотношения между параметрами взаимодействия и их значения не были определены. Влияние квадрупольных взаимодействий на результаты моделирования физических свойств РЗ-пирохлоров не исследовалось.

Компоненты оператора электрического квадрупольного момента иона (пропорциональные сферическим тензорным операторам второго ранга) в кристаллическом поле симметрии D_{3d} преобразуются по неприводимым

представлениям Γ_1 и Γ_3 группы D_{3d} :

$$\begin{aligned} Q_{\Gamma_1} &= C_Q[3L_Z^2 - L(L+1)]/\sqrt{3}, \\ Q_{\Gamma_3,1} &= C_Q(L_X L_Z + L_Z L_X), \quad Q_{\Gamma_3,2} = C_Q(L_Z L_Y + L_Y L_Z), \\ Q_{\Gamma_3,3} &= C_Q(L_X^2 - L_Y^2), \quad Q_{\Gamma_3,4} = C_Q(L_X L_Y + L_Y L_X), \end{aligned} \quad (9)$$

здесь C_Q — коэффициент пропорциональности. Используя инвариантность оператора Гамильтона относительно преобразований группы симметрии кристалла со структурой пирохлора, параметризованный оператор энергии взаимодействия квадрупольных моментов двух ионов Pr^{3+} , расположенных в позициях i и j , может быть записан в следующем виде:

$$\begin{aligned} H_{\text{QQ}}(i, j) = & a_{\Gamma_1\Gamma_1}Q_{\Gamma_1}(i)Q_{\Gamma_1}(j) \\ & + \Sigma_{\nu=1,2}\Sigma_{\lambda=1,2}a_{\Gamma_3\Gamma_3}Q_{\Gamma_3\lambda}(i)Q_{\Gamma_3\lambda}(j) \\ & + a_{\Gamma_3\Gamma_3}\Sigma_{\lambda=1,2}(Q_{\Gamma_3\lambda}(i)Q_{\Gamma_3\lambda}(j) + Q_{\Gamma_3\lambda}(i)Q_{\Gamma_3\lambda}(j)) \\ & + \Sigma_{\nu=1,2}a_{\Gamma_3\Gamma_3}[\cos\alpha_{ij}(Q_{\Gamma_1}(i)Q_{\Gamma_3\nu}(j) + Q_{\Gamma_3\nu}(i)Q_{\Gamma_1}(j)) \\ & + \sin\alpha_{ij}(Q_{\Gamma_1}(i)Q_{\Gamma_3\nu}(j) + Q_{\Gamma_3\nu}(i)Q_{\Gamma_1}(j))] \\ & + \cos\alpha_{ij}[b_{\Gamma_3\Gamma_3}(Q_{\Gamma_31}(i)Q_{\Gamma_31}(j) - Q_{\Gamma_32}(i)Q_{\Gamma_32}(j)) \\ & + \Sigma_{\nu=1,2}b_{\Gamma_3\Gamma_3}(Q_{\Gamma_3\nu}(i)Q_{\Gamma_3\nu}(j) - Q_{\Gamma_3\nu}(i)Q_{\Gamma_3\nu}(j))]. \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь $a_{\Gamma\Gamma'}$ и $b_{\Gamma\Gamma'}$ — феноменологические параметры модели, $\alpha_{ij} = \alpha_{ji}$, $\alpha_{12} = \alpha_{34} = -1$, $\alpha_{13} = \alpha_{24} = \pi/3$, $\alpha_{14} = \alpha_{23} = -\pi/3$. Структура полученного оператора согласуется с недавней работой [23].

Параметры анизотропного обменного взаимодействия и параметры квадрупольного взаимодействия пропорциональны четвертой степени интегралов переброса электронов между спин-орбиталями ионов Pr^{3+} с незаполненными электронными оболочками через промежуточные состояния лигандов [24]. Величина этих взаимодействий быстро убывает с увеличением расстояния между ионами, поэтому достаточно учитывать взаимодействие только между ближайшими ионами Pr^{3+} в вершинах элементарного тетраэдра с мостиковым ионом кислорода в позиции $8b$ в центре.

Таким образом, оператор энергии кристалла может быть записан в виде

$$\begin{aligned} H = & \Sigma_i(H_0(i) + H_Z(i)) + \Sigma_{ij}H_{\text{dd}}(ij) \\ & + \Sigma_{ij'}(H_{\text{exch}}(ij') + H_{\text{QQ}}(ij')). \end{aligned} \quad (11)$$

В последней сумме суммирование проводится только по ближайшим соседям. Как правило, гамильтониан двухчастичных взаимодействий рассматривается в приближении среднего поля. В этом случае оператор, действующий на состояния одного из взаимодействующих ионов, заменяется его средним значением. Таким образом, двухчастичные взаимодействия учитываются

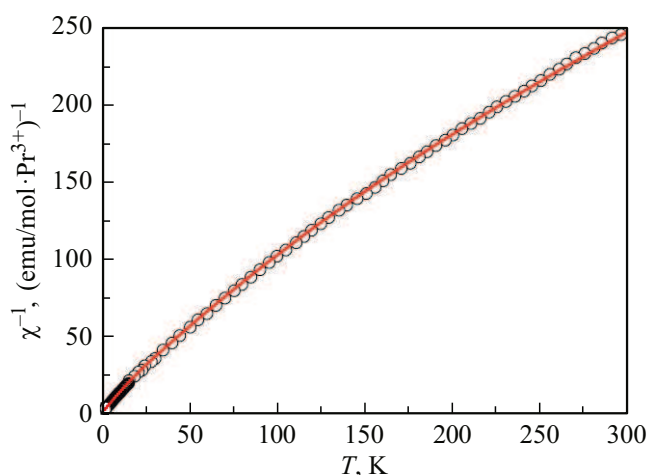


Рис. 1. Экспериментальная (кружки [2]) и вычисленная (сплошная линия) температурные зависимости обратной статической магнитной восприимчивости χ^{-1} в магнитном поле $B = 0.1$ Т.

в виде действующего на ион эффективного магнитного поля, величина и направление которого зависят от средних значений магнитных моментов остальных ионов. Расчет наблюдаемых величин проводится методом последовательных приближений. Такой подход удобен, поскольку в итоге рассматривается одночастичный оператор Гамильтона, однако при этом не учитываются флуктуации магнитных моментов. Кроме того, при учете квадруполь-квадрупольных взаимодействий приближение среднего поля неприменимо, поскольку средние значения операторов компонент тензора электрического квадрупольного момента равны нулю даже в приложенном внешнем магнитном поле. Поэтому в настоящей работе использовалось кластерное приближение. Взаимодействия между ионами, входящими в кластер, учитывались точно, а взаимодействия между ионами, входящими в кластер, с ионами вне кластера рассматривались в приближении среднего поля.

Результаты и обсуждение

Значения параметров обменного взаимодействия $\lambda_{\parallel} = 0.15$, $\lambda_{\perp 1} = 0.07$, $\lambda_{\perp 2} = 0.04$, $\lambda_{DM} = 0$ (в единицах T/μ_B) были определены из анализа температурной зависимости обратной магнитной восприимчивости [2,5,25,26] в области температур 2–300 К (рис. 1). Восприимчивости изолированных ионов были получены из расчетов магнитных моментов в полях $B = 0.01$ Т с учетом орбитального фактора редукции $k = 0.97$. Полученная из расчета температурной зависимости восприимчивости температура Кюри–Вейса -0.3 К не противоречит имеющимся в литературе данным измерений [27].

Результаты расчетов полевых зависимостей намагниченности монокристалла $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ в рамках модели

самосогласованных тетраэдрических кластеров в полях, приложенных вдоль кристаллографических осей, хорошо воспроизводят экспериментальные данные в области температур 10–150 К (на рис. 2 показаны расчеты при температурах 20 и 10 К).

При низких температурах и в достаточно сильных полях ($B > 2$ Т) в согласии с данными измерений результаты вычислений демонстрируют хорошо известную одно-ионную анизотропию намагниченности изинговских ионов в кристалле кубической симметрии, однако вычисленные в рамках модели самосогласованных тетраэдрических кластеров без учета квадрупольных взаимодействий величины магнитных моментов существенно превышают измеренные.

На следующем шаге моделирования низкотемпературной намагниченности мы добавили в оператор Гамильтона тетраэдра энергию квадрупольных взаимодействий, предполагая, что упорядочивание квадрупольных моментов отсутствует. При низких температурах ($T < 10$ К) основной вклад в намагниченность вносят ионы, находящиеся на одном из зеемановских подуровней основного некрамерсовского дублета. Поскольку полносимметричная компонента оператора квадрупольного момента Q_{Γ_1} не смешивает волновые функции подуровней основного дублета, в операторе квадрупольных взаимодействий (10) были учтены только слагаемые, содержащие произведения компонент квадрупольного момента $Q_{\Gamma_3^1, \lambda}$, $Q_{\Gamma_3^2, \lambda}$.

Вследствие уменьшения числа динамических переменных эффективный оператор квадрупольных взаимодействий содержит только шесть варьируемых параметров. Из сравнения результатов вычислений намагниченности при температурах 4 и 1.9 К с данными измерений мы получили величины параметров связи квадрупольных моментов $a_{\Gamma_3^1 \Gamma_3^1} = 0.056$, $a_{\Gamma_3^2 \Gamma_3^2} = 0.023$, $a_{\Gamma_3^1 \Gamma_3^2} = 0.060$, $b_{\Gamma_3^1 \Gamma_3^2} = 0.011$, $b_{\Gamma_3^1 \Gamma_3^1} = 0$, $b_{\Gamma_3^2 \Gamma_3^2} = 0.029$ (в единицах K/C_Q^2). Вычисленные при использовании этих значений параметров полевые зависимости намагниченности монокристалла $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ в магнитных полях, параллельных кристаллографическим осям, при температурах 4.2 и 1.9 К представлены на рис. 2.

На рис. 2 также сравниваются результаты расчетов намагниченности монокристалла $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ при $T = 1.9$ К, выполненные с учетом и без учета квадрупольных взаимодействий РЗ-ионов. Хорошо видно, что взаимодействие квадрупольных моментов ионов Pr^{3+} уменьшает магнитные моменты ионов.

Тем не менее вычисленная намагниченность при $T = 1.9$ К в поле, направленном вдоль тетрагональной оси симметрии [001], все еще превышает данные измерений (рис. 2). Дополнительное уменьшение магнитных моментов при низких температурах может быть следствием структурной неупорядоченности образцов, использованных в измерениях. О существенной зависимости намагниченности образцов от условий синтеза свидетельствует заметное различие данных измерений,

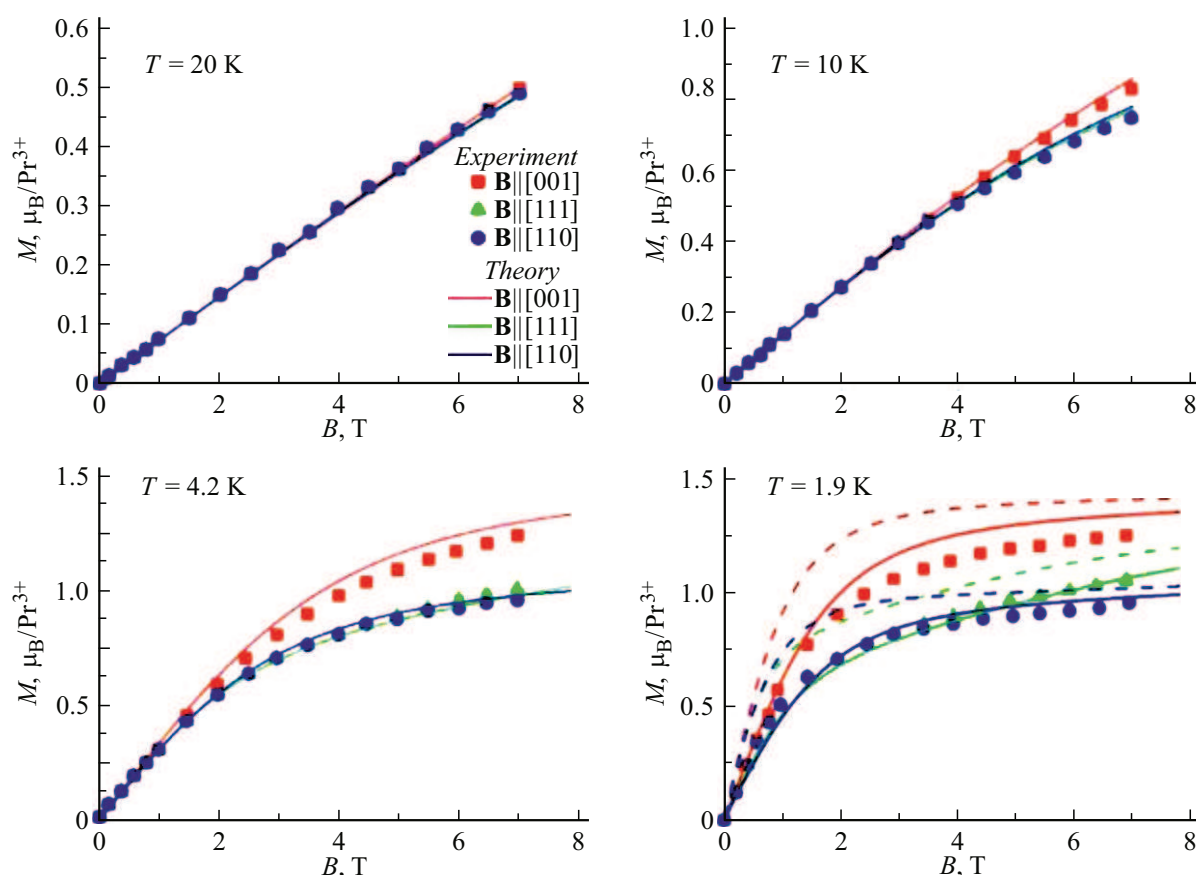


Рис. 2. Экспериментальные (символы [25]) и вычисленные (сплошные линии) полевые зависимости намагниченности $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ в магнитных полях, направленных вдоль кристаллографических осей, при температурах $T = 20, 10, 4.2$ и 1.9 К (обозначения одинаковые на всех рисунках). Штриховые линии — результаты расчета без учета квадрупольных взаимодействий ионов Pr^{3+} .

выполненных в разных лабораториях в Японии и Франции при одинаковых полях и температурах [25,28].

Заключение

В настоящей работе показано, что квадрупольные взаимодействия конкурируют с магнитными взаимодействиями. При учете квадрупольных взаимодействий параметры анизотропного обменного взаимодействия перенормируются. Таким образом, эффективный момент РЗ-иона при низких температурах уменьшается. Учет квадрупольных взаимодействий позволил значительно улучшить согласие результатов моделирования и экспериментальных данных по намагниченности $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ в области температур ниже 10 К.

Благодарности

Авторы благодарят М.В. Еремина за ценные замечания по форме записи вектора Дзялошинского–Мории.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] P.W. Anderson. *Science*, **235**, 1196 (1987).
- [2] P. Bonville, S. Guitteny, A. Gukasov, I. Mirebeau, S. Petit, C. Decorse, M. Ciomaga Hatnean, G. Balakrishnan. *Phys. Rev. B*, **94**, 134428 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevB.94.134428
- [3] N. Tang, Yu. Gritsenko, K. Kimura, S. Bhattacharjee, A. Sakai, M. Fu, H. Takeda, H. Man, K. Sugawara, Y. Matsumoto, Ya. Shimura, J. Wen, C. Broholm, H. Sawa, M. Takigawa, T. Sakakibara, S. Zherlitsyn, J. Wosnitza, R. Moessner, S. Nakatsuji. *Nat. Phys.*, **19**, 92 (2023). DOI: 10.1038/s41567-022-01816-4
- [4] P. Santini, S. Carretta, G. Amoretti, R. Caciuffo, N. Magnani, G.H. Lander. *Rev. Mod. Phys.*, **81**, 807 (2009). DOI: 10.1103/RevModPhys.81.807
- [5] M. Ciomaga Hatnean, C. Decorse, M.R. Lees, O.A. Petrenko, D.S. Keeble, G. Balakrishnan. *Mater. Res. Express*, **1**, 026109 (2014). DOI: 10.1088/2053-1591/1/2/026109
- [6] V.V. Klekovkina, A.R. Zakirov, B.Z. Malkin, L.A. Kasatkina. *J. Phys.: Conf. Ser.*, **324**, 012036 (2011). DOI: 10.1088/1742-6596/324/1/012036
- [7] H.M. Crosswhite, H. Crosswhite. *J. Opt. Soc. Am. B*, **1**, 246 (1984). DOI: 10.1364/JOSAB.1.000246
- [8] B.Z. Malkin. *Crystal Field and Electron-Phonon Interaction in Rare-Earth Ionic Paramagnets in Spectroscopy of Solids*

- Containing Rare Earth Ions* (North-Holland, Amsterdam, 1987), ch. 2, p. 13.
- [9] V.V. Klekovkina, N.M. Abishev. *Opt. Spectrosc.*, **131**, 4 (2023). DOI: 10.21883/EOS.2023.04.56355.65-22
 - [10] K. Kimura, S. Nakatsuji, J.-J. Wen, C. Broholm, M.B. Stone, E. Nishibori, H. Sawa. *Nat. Commun.*, **4**, 1934 (2013). DOI: 10.1038/ncomms2914
 - [11] V.K. Anand, L. Opherden, J. Xu, D.T. Adroja, A.T.M.N. Islam, T. Herrmannsdörfer, J. Hornung, R. Schönemann, M. Uhlarz, H.C. Walker, N. Casati, B. Lake. *Phys. Rev. B*, **94**, 144415 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevB.94.144415
 - [12] R. Sibille, E. Lhotel, M. Ciomaga Hatnean, G. Balakrishnan, B. Fåk, N. Gauthier, T. Fennell, M. Kenzelmann. *Phys. Rev. B*, **94**, 024436 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevB.94.024436
 - [13] I.E. Dzialoshinskii. *Sov. Physics JETP*, **5**, 1259 (1957).
 - [14] I. Dzyaloshinsky. *J. Phys. Chem. Sol.*, **4**, 241 (1958).
 - [15] T. Moriya. *Phys. Rev. Lett.*, **4**, 228 (1960).
 - [16] T. Moriya. *Phys. Rev.*, **120**, 91 (1960).
 - [17] A.S. Moskvina. *Sov. Phys. Solid State*, **12**, 2593 (1971).
 - [18] S. Onoda, Y. Tanaka. *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 047201 (2010).
 - [19] H. Kadowaki, H. Takatsu, T. Taniguchi, B. Fåk, J. Ollivier. *SPIN*, **5**, 154003 (2015). DOI: 10.1142/S2010324715400032
 - [20] H. Takatsu, S. Onoda, S. Kittaka, T. Sakakibara, H. Kadowaki. *Phys. Rev. Lett.*, **116**, 217201 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.217201
 - [21] J.G. Rau, M.J.P. Gingras. *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.*, **10**, 357 (2019). DOI: 10.1146/annurev-conmatphys-022317-110520
 - [22] A. Roll, V. Balédent, J. Robert, J. Ollivier, C. Decorse, S. Guitteny, I. Mirebeau, S. Petit. *Phys. Rev. Res.*, **6**, 043011 (2024). DOI: 10.1103/PhysRevResearch.6.043011
 - [23] K.T.K. Chung, S. Petit, J. Robert. *arXiv:2506.19908* (2025).
 - [24] S. Onoda, Y. Tanaka. *Phys. Rev. B*, **83**, 094411 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevB.83.094411
 - [25] K. Kimura, S. Nakatsuji, A.A. Nugroho. *J. Korean Phys. Soc.*, **63**, 719–721 (2013). DOI: 10.3938/jkps.63.719
 - [26] S.M. Koohpayeh, J.-J. Wen, B.A. Trump, C.L. Broholm, T.M. McQueen. *J. Cryst. Growth*, **402**, 291 (2014). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2014.06.037
 - [27] K. Matsuhira, C. Sekine, C. Paulsen, M. Wakeshima, Y. Hinatsu, T. Kitazawa, Y. Kiuchi, Z. Hiroi, S. Takagi. *Phys.: Conf. Ser.*, **145**, 012031 (2009). DOI: 10.1088/1742-6596/145/1/012031
 - [28] S. Petit, E. Lhotel, S. Guitteny, O. Florea, J. Robert, P. Bonville, I. Mirebeau, J. Ollivier, H. Mutka, E. Ressouche, C. Decorse, M. Ciomaga Hatnean, G. Balakrishnan. *Phys. Rev. B*, **94**, 165153 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevB.94.165153