

В.М. КАЛИТА,^{1,2,3} Г.Ю. ЛАВАНОВ,⁴ В.М. ЛОКТЕВ^{1,5}

¹ Національний технічний університет України
“Київський політехнічний інститут ім. Ігоря Сікорського”
(Просп. Перемоги 37, Київ 03056)

² Інститут фізики НАН України
(Просп. Науки 46, Київ 03028)

³ Інститут магнетизму НАН України та МОН України
(Бул'єв. В.І. Вернадського 366, Київ 03142)

⁴ Національний авіаційний університет
(Просп. Любомира Гузара 1, Київ 03058)

⁵ Інститут теоретичної фізики ім. М.М. Боголюбова НАН України
(Вул. Метрологічна 14-б, Київ 03143, Україна; e-mail: vloktev@bitp.kiev.ua)

НАМАГНІЧУВАННЯ І МАГНІТОКАЛОРИЧНИЙ ЕФЕКТ В АНТИФЕРОМАГНЕТИКУ З КОНКУРУЮЧИМИ ІЗІНГІВСЬКОЮ ОБМІННОЮ ТА ОДНОІОННОЮ АНІЗОТРОПІЯМИ

УДК 539

Досліджено намагнічування двопідґраткового ізінгівського антиферромагнетика з легкоплощинною одноіонною анізотропією, яке може супроводжуватися двома фазовими перетвореннями 1-го роду. Перше, індукване магнітним полем, є ізоструктурним, коли симетрія системи не змінюється і відбувається перехід між двома антиферромагнітними станами з різними величинами намагніченості підґраток. Друге, також індукване магнітним полем, перетворення має місце при зміні стану системи з антиферромагнітного на ферромагнітний. При обох цих фазових перетвореннях поведінка ентропії в залежності від поля містить два послідовних і додатних за величиною стрибки її величини, що не є типовим для класичних антиферромагнетиків. З іншого боку, коли температура системи перевищує трикритичну температуру ізоструктурного фазового переходу, в залежності ентропії від поля виникає неперервний максимум.

Ключові слова: фазові переходи 1-го роду, антиферромагнетик, модель Ізінга, легкоплощинна одноіонна анізотропія, магнітокалоричний ефект.

1. Вступ

Як відомо, намагнічування сильно анізотропно-го антиферромагнетика (АФМ) може відбуватися стрибком як метамагнітний фазовий перехід (ФП) 1-го роду [1–8]. Вперше такі ФП, індуквані зовнішнім магнітним полем, були виявлені в АФМ [9], для яких, як з'ясувалося, величина поля магнітної анізотропії більша у порівнянні з ефективним міжпідґратковим обмінним полем, що визначає ін-

тенсивність міжпідґраткової обмінної спін-спінової взаємодії. Значний внесок у вивчення магнітних властивостей АФМ дігалідах групи заліза зі слабким міжпідґратковим обміном – АФМР, магнітострикції, магнітних ФП, тощо – був зроблений відомим українським фізиком-експериментатором С.М. Рябченком та його учнями (див. [10–15]), якому ми присвячуємо нашу роботу.

Якщо мова про процес намагнічування АФМ, то у деяких випадках воно може супроводжуватися декількома метамагнітними ФП [16–20], кожний з

© В.М. КАЛИТА, Г.Ю. ЛАВАНОВ, В.М. ЛОКТЕВ, 2020

852

ISSN 2071-0194. Укр. фіз. журн. 2020. Т. 65, № 10

яких має стрибкоподібний характер. Така ситуація характерна, зокрема, для багатопідграткових АФМ [21, 22]. В роботі [16] була розглянута фізично простіша ситуація, коли два метамагнітних ФП 1-го роду виникають навіть у двопідгратковому АФМ. Таке може статися при намагнічуванні АФМ з більш складним характером міжіонних взаємодій, коли, наприклад, міжпідграткова взаємодія має граничний вигляд ізінгівської і орієнтує спіни підграток вздовж легкої осі, а одноіонна магнітна анізотропія має характер легкоплощинної, а не легковісної, як у роботі [23]. Легкоплощинна одноіонна магнітна анізотропія може стабілізувати в одній з підграток синглетний стан або, у більш загальному випадку, проміжний стан [16, 23] з меншою за номінальну величиною проекції спіна.

В даній роботі ми робимо спробу дослідити послідовність двох метамагнітних ФП в ізінгівському АФМ [24–26] з одноіонною магнітною анізотропією [27–29] легкоплощинного типу зі спінами іонів $S = 1$ при кінцевих температурах, $T \neq 0$. Задача магнітного впорядкування ізінгівського АФМ зі спінами $S = 1/2$ була вичерпно вивчена в роботі [30], де було показано, що в такій модельній системі відбувається тільки один або метамагнітний, або магнітний ізоструктурний ФП 1-го роду. В цій роботі була використана вільна енергія у вигляді степеневого розкладу потенціалу Ландау за величиною модуля вектора антиферромагнетизму до 8-го порядку включно у припущенні його (модуля) малості. Проте таке наближення теорії Ландау не може бути використане у випадку двох метамагнітних ФП з кінцевими і немалими за величиною стрибками намагніченості навіть за умови урахування інваріантів з великими степенями параметра порядку, а отримання результатів є можливим лише завдяки чисельному аналізу вільної енергії. Крім того, магнітний ізоструктурний ФП 1-го роду у АФМ з $S = 1/2$ існує тільки у вузькому інтервалі температур поблизу трикритичної точки [30]. Це саме отримано і для АФМ з легкоосьовою одноіонною анізотропією і з $S = 1$ [31]. Проте слід зауважити, що з роботи [23] випливає, що у випадку легкоплощинної одноіонної анізотропії зі спінами іонів $S = 1$ ізоструктурний магнітний ФП повинен бути в усьому інтервалі температур від $T = 0$ до трикритичної точки.

Другою важливою обставиною вивчення системи з кількома метамагнітними ФП є можливість

дослідження її магнітної ентропії. Буде серед іншого показано, що в таких системах її поведінка, а отже, і поведінка магнітокалоричного ефекту, відрізняється від того ж ефекту в АФМ з одним метамагнітним ФП [32].

2. Гамільтоніан моделі

Оператор Гамільтона двохпідграткової системи з конкуруючими ізінгівською та одноіонною анізотропіями представимо у вигляді

$$\hat{H} = \frac{1}{2} \sum_{f_\alpha, g_\beta} I_{f_\alpha, g_\beta} \hat{S}_{f_\alpha}^z \hat{S}_{g_\beta}^z + D \sum_{f_\alpha} (\hat{S}_{f_\alpha}^z)^2 - H_z \sum_{f_\alpha} \hat{S}_{f_\alpha}^z, \quad (1)$$

де I_{f_α, g_β} – константи обмінної (ізінгівської) взаємодії між магнітними іонами зі спінами $S = 1$, локація яких задається числами f_α та g_β , де $\alpha, \beta = 1, 2$ – номери підграток, коли $\alpha = \beta$ константа внутрішньо-підграткового обміну від’ємна, коли $\alpha \neq \beta$ вона додатна, а обмін є міжгратковим і тим самим забезпечує вихідну АФМ структуру, $\hat{S}_{f_\alpha}^z$ – оператори проекції спіна на вісь Z , D – константа додатної (тобто “перпендикулярної” за дією відносно осі Z легкоплощинної анізотропії, $D > 0$, зовнішнє магнітне поле паралельне до ізінгівської осі $H_z \parallel Z$).

Енергія (E) взаємодії для гамільтоніана (1) у розрахунку на два іони з різних підграток може бути записана у вигляді

$$E = \frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta} I_{\alpha\beta} s_\alpha s_\beta + D \sum_{\alpha} q_\alpha - H_z \sum_{\alpha} s_\alpha, \quad (2)$$

де $I_{\alpha\alpha} = p_{f_\alpha g_\alpha} I_{f_\alpha g_\alpha}$, $p_{f_\alpha g_\alpha}$ – число найближчих сусідів у іона зі “своєї” підгратки, $I_{\alpha\neq\beta} = p_{f_\alpha g_\beta} I_{f_\alpha g_\beta}$, де $p_{f_\alpha g_\beta}$ – число найближчих сусідів з “чужої” підгратки $\alpha \neq \beta$, s – термодинамічні середні операторів $\hat{S}_{f_\alpha}^z$, а q – такі ж середні операторів $(\hat{S}_{f_\alpha}^z)^2$ і відповідають спіновим квадрупольним моментам.

Для $T = 0$ середні в (2) визначаються як квантові по хвильовій функції іона $|\psi_\alpha\rangle = \sum_{m_\alpha} C_{m_\alpha} |m_\alpha\rangle$, де $m_\alpha = 0, 1$, а C_{m_α} – варіаційні, як буде видно, параметри. В результаті, можна записати очевидні рівності:

$$s_\alpha = |C_{+1_\alpha}|^2 - |C_{-1_\alpha}|^2, \quad q_\alpha = |C_{+1_\alpha}|^2 + |C_{-1_\alpha}|^2. \quad (3)$$

При визначенні станів, точок ФП та меж стійкості фаз можна використати функцію Лагранжа, записану як функціонал від параметрів C_{m_α} [33, 34], яка має вигляд

$$L = \frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta} I_{\alpha\beta} (|C_{+1_\alpha}|^2 - |C_{-1_\alpha}|^2) (|C_{+1_\beta}|^2 - |C_{-1_\beta}|^2) + D \sum_{\alpha} (|C_{+1_\alpha}|^2 + |C_{-1_\alpha}|^2) - H_z \sum_{\alpha} (|C_{+1_\alpha}|^2 - |C_{-1_\alpha}|^2) + \sum_{\alpha} \lambda_{\alpha} (1 - |C_{+1_\alpha}|^2 - |C_{0_\alpha}|^2 - |C_{-1_\alpha}|^2), \quad (4)$$

де λ_{α} – множники Лагранжа. В цьому виразі враховано умову нормування $\sum_{m_\alpha} |C_{m_\alpha}|^2 = 1$.

При $T = 0$ стани знаходяться з мінімуму функції Лагранжа по параметрах хвильової функції $L(C_{m_\alpha})$ [33, 34].

При цьому неважко перевірити, що стійкими можуть бути стани:

1. АФМ стан з $s_1 = 1, s_2 = -1$, енергія якого дорівнює $E_{\text{АФМ1}} = I_{11} + I_{12} + 2D$.

2. АФМ стан з $s_1 = 1, s_2 = 0$, енергія якого $E_{\text{АФМ2}} = \frac{1}{2}I_{11} + D - H_z$. У цьому стані при $H_z \neq 0$ іони однієї з підґраток перебувають у ван-Флеківському ненамагніченому основному стані $|0\rangle$. Якщо в $H_z = 0$ ця спінова конфігурація є основною, то такий стан слід визначати як феримагнітний.

3. ФМ стан з $s_1 = 1, s_2 = 0$ з енергією $E_{\text{ФМ}} = I_{11} + I_{12} + 2D - 2H_z$.

Видно, що енергія $E_{\text{АФМ1}}$ не залежить від магнітного поля, а $E_{\text{АФМ2}}$ залежна від нього. Залежною від величини магнітного поля є також енергія ФМ стану. Подібні особливості польової поведінки енергії основного стану зумовлюють виникнення при намагнічуванні послідовності двох ФП. Критичне поле першого ФП 1-го роду між двома АФМ станами є $H_I = -\frac{1}{2}I_{11} + I_{12} - D$, а друге критичне поле між АФМ фазою з ненамагніченою підґраткою та ФМ станом $-H_{II} = \frac{1}{2}I_{11} + I_{12} + D$, причому, як показано в [23], може бути, що $H_I < H_{II}$. Поле переходу з ненамагніченого АФМ стану до ФМ стану $H_c = I_{12}$. Отже, аби відбувалися два ФП необхідно, щоб $H_I < H_c$, тобто має виконуватися нерівність $-\frac{1}{2}I_{11} - D < 0$, що

можливо тільки у випадку легкоплощинної одноіонної анізотропії. Слід зауважити, що в [17, 31] аналізувався гамільтоніан (1) з легкоосьовою одноіонною анізотропією, коли в (1) величина $D < 0$.

3. Вільна енергія системи

Якщо $T \neq 0$, рівняння станів і границі їхньої стійкості знаходяться з вільної енергії F , яку визначимо стандартною формулою $F = E - T\sigma$, що містить ентропію $\sigma = -\sum_{m_\alpha} p_{m_\alpha} \ln p_{m_\alpha}$, де p_{m_α} – термодинамічна ймовірність іона перебувати у стані з $m_\alpha = 0, \pm 1$, а обов'язкова умова нормування випливає з необхідної для повної ймовірності рівності $p_{1_\alpha} + p_{-1_\alpha} + p_{0_\alpha} = 1$.

У такому випадку термодинамічні середні можуть бути записані у простому вигляді

$$s_\alpha = p_{1_\alpha} - p_{-1_\alpha}; \quad q_\alpha = p_{1_\alpha} + p_{-1_\alpha}, \quad (5)$$

а вираз для вільної енергії легко представити функціоналом від термодинамічних середніх s_α та q_α :

$$F = \frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta} I_{\alpha\beta} s_\alpha s_\beta + D \sum_{\alpha} q_\alpha - H_z \sum_{\alpha} s_\alpha + T \sum_{\alpha} \left(\frac{q_\alpha + s_\alpha}{2} \ln \frac{q_\alpha + s_\alpha}{2} + \frac{q_\alpha - s_\alpha}{2} \times \ln \frac{q_\alpha - s_\alpha}{2} + (1 - q_\alpha) \ln(1 - q_\alpha) \right). \quad (6)$$

Пошук рівноважних станів та границь їхньої стійкості знайдемо з умови мінімуму вільної енергії $F(s_\alpha, q_\alpha)$ [33]. В цілому, задача опису послідовності ФП є нелінійною і потребує чисельного розв'язку.

4. Польові залежності намагніченості

Польові залежності для намагнічування будуть отримані за допомогою виразів для функціоналів (4) та (6). Для зручності побудови кривих намагніченості параметри моделі зручно обезрозмірити. Тоді змінною для температур виступає $t = T/T_N$, де $T_N = |I_{11}| + I_{12}$ – температура Нееля АФМ без врахування легкоплощинної анізотропії. Константа внутрішньо-підґраткового обміну, константа одноіонної анізотропії, магнітне поле та вільна енергія нормуються на ту ж величину, а саме: $k = I_{12}/T_N, d = D/T_N, h = H_z/T_N$.

Для прикладу на рис. 1 показано графік польової залежності для намагніченості $m = (s_1 + s_2)/2$ при $t = 0,12$, коли безрозмірна чисельна константа анізотропії $d = 0,45$, а константа внутрішньо-підґраткового обміну має величину $k = 0,6$. При цих параметрах спостерігається послідовність двох метаманітних ФП 1-го роду.

Критичне поле першого з них, визначене рівністю вільних енергій, становить $h_I(t = 0,12) = 0,245$, а при $T = 0$ його величина $h_I(t = 0) = 0,25$. У точці $h_I(t = 0,12)$ виникає стрибок намагніченості, який позначено подвійною стрілкою. У точці h_I відбувається метаманітний ФП 1-го роду з АФМ стану з $m \approx 0$ та $s_1 \approx -s_2$ (спін підґратки 1 направлений за полем, $s_1 \uparrow \uparrow h$, а спін підґратки 2 – проти поля, $s_2 \uparrow \downarrow h$), в АФМ стан з $m = 1/2$, в якому $s_1/|s_2| \gg 1$. Отже, перший метаманітний ФП відбувається між двома АФМ станами, які відрізняються між собою величиною середнього спіну підґратки 2 при майже постійному спіні підґратки 1.

Критичне поле другого переходу $h_{II}(t = 0,12) = 0,54$, а його величина $h_{II}(t = 0) = 0,55$. У точці $h_{II}(t = 0,12)$ спостерігається стрибок намагніченості, який відповідає метаманітному ФП 1-го роду з АФМ стану до ФМ, в якому $m \approx s_1 = s_2$. Стрибок намагніченості при $h = h_{II}$ на рис. 1 також позначено подвійною стрілкою. Як бачимо, величини обох наведених на рис. 1 критичних полів ФП 1-го роду слабо залежать від температури.

На рис. 1 намагніченість стійких станів позначено суцільними лініями. АФМ фаза стійка в інтервалі полів $[0, h_{AFM}]$, а рівноважна – в межах $[0, h_{II}]$. Менш намагнічена АФМ фаза є стійкою в інтервалі полів $[0, h_R]$, а більш намагнічена АФМ фаза залишається стійкою в інтервалі полів $[h_L, h_{AFM}]$. ФМ фаза є стійкою для полів $h > h_{FM}$ і рівноважною при $h > h_{II}$.

На рис. 2 показано хід польової залежності для намагніченості для температур $t = 0,16$ (суцільні лінії), $t = 0,22$ (штрих-пунктирні лінії). Для температури $t = 0,16$ має місце лише один метаманітний ФП 1-го роду, який є ФП між АФМ і ФМ фазами. Стрибок намагніченості тут також позначено подвійною стрілкою, а критичне поле дорівнює h_{II} . АФМ фаза є стійкою в полях $h < h_{AFM}$, а рівноважною – при $h < h_{II}$. ФМ фаза зберігає стійкість в полях $h > h_{FM}$, а рівноважність – при $h > h_{II}$. Для $t = 0,22$ перехід з АФМ фази в ФМ

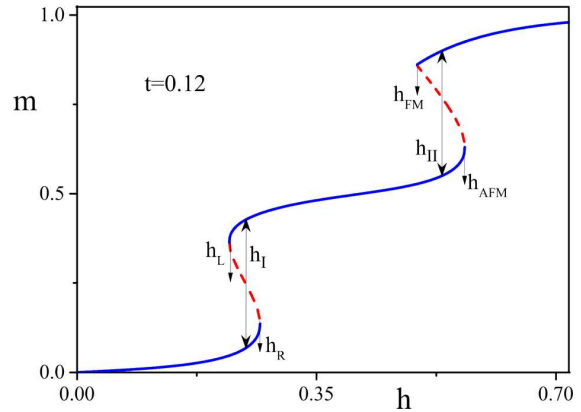


Рис. 1. Польова залежність намагніченості $m(h)$, h_I та h_{II} – критичні поля ФП 1-го роду, h_{AFM} – границя стійкості АФМ стану, h_{FM} – границя стійкості ФМ стану, h_L , h_R – поля стійкості АФМ фази з різним значенням спіна підґратки 2

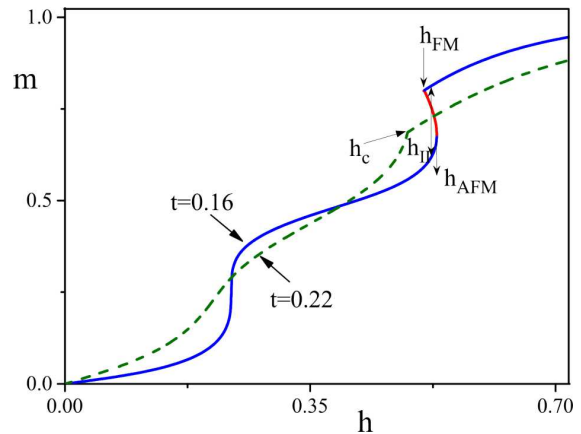


Рис. 2. Польова залежність намагніченості $m(h)$, h_{II} – критичне поле ФП 1-го роду між АФМ та ФМ фазами, h_{AFM} – межа стійкості АФМ стану, h_{FM} – межа стійкості ФМ стану, h_c – критичне поле ФП 2-го роду між АФМ та ФМ фазами

фази відбувається неперервно у вигляді ФП 2-го роду в точці h_c . При цьому АФМ стан існує при $h < h_c$, а в точці $h = h_c$ неперервно перетворюється на ФМ стан.

Розраховуючи величини критичних полів, які стрілками показані на рис. 1 та рис. 2, можна знайти хід їх температурної залежності.

5. Фазова $h-t$ діаграма

Побудова температурних залежностей величин полів $h_I(t)$, $h_{II}(t)$, $h_{AFM}(t)$, $h_{FM}(t)$, $h_L(t)$, $h_R(t)$, $h_c(t)$

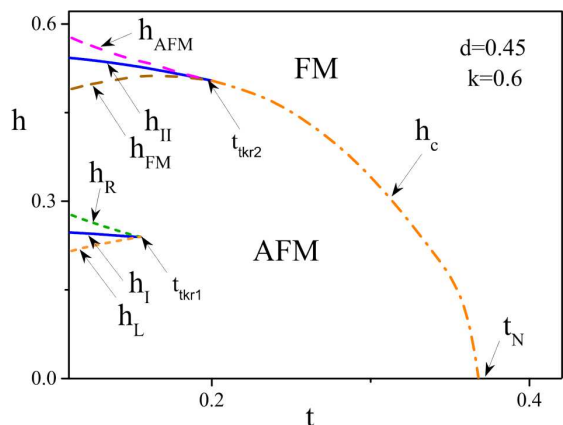


Рис. 3. Фазова $h-t$ діаграма, суцільними позначено ФП 1-го роду, пунктиром межі стійкості фаз, штрих-пунктир ФП 2-го роду

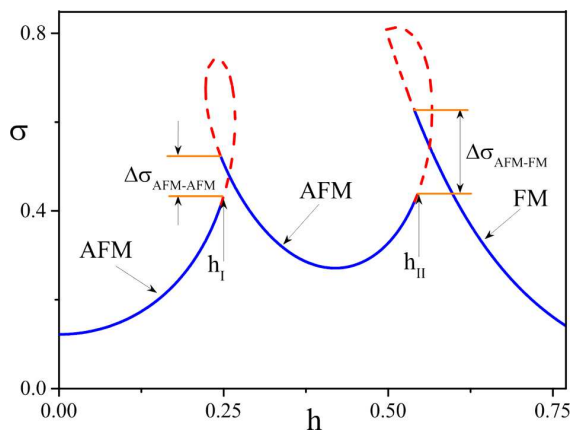


Рис. 4. Залежність магнітної ентропії $\sigma(h)$ при подвійному метамагнітному ФП для $t = 0,12$ та параметрах $d = 0,45$, $k = 0,6$

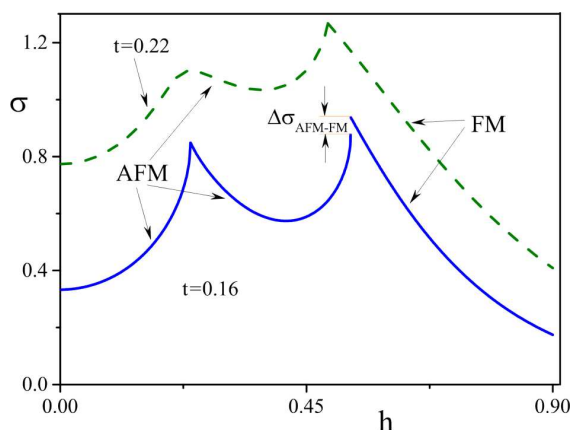


Рис. 5. Залежність магнітної ентропії $\sigma(h)$ для $t = 0,16$ (суцільна крива) та $t = 0,22$ (пунктир)

дозволяє відтворити фазову $h-t$ діаграму. Для випадку розглянутих на рис. 1 та рис. 2 типів намагнічування вона має вигляд, зображений на рис. 3.

Лінії ФП 1-го роду та лінії полів стійкості фаз сходяться у трикритичних точках t_{tkr1} , t_{tkr2} , причому $t_{tkr2} < t_{tkr1}$. При ФП між АФМ та ФМ фазами в трикритичну точку t_{tkr2} також підходить лінія ФП 2-го роду $h_c(t)$, яка при високих температурах прямує до точки Нееля.

6. Магнітна ентропія

На рис. 4 показана польова залежність магнітної ентропії $\sigma(h)$ при $t = 0,12$, яка менша t_{tkr1} і для параметрів моделі, що були використані при розрахунку магнетизації на рис. 1 та рис. 2. Суцільними лініями позначено ентропію для рівноважних станів, а пунктиром для нерівноважних станів.

У критичних полях ФП 1-го роду h_I та h_{II} мають місце стрибки ентропії: $\Delta\sigma_{AFM-AFM}$ – її стрибок при ізоструктурному ФП та $\Delta\sigma_{AFM-FM}$ – при переході з АФМ фази до ФМ. Якісно і навіть кількісно поведінка ентропії поблизу критичного поля h_I мало відрізняється від її поведінки біля точки h_{II} . Отже, в процесі намагнічування максимальна величина магнітокалоричного ефекту буде фактично досягнута в меншому за величиною критичному полі h_I . Наведена на рис. 4 польова залежність ентропії у випадку двоідраткового ізінгівського АФМ з легкоплосинною одноіонною анізотропією суттєво відрізняється від її ходу для АФМ з одним метамагнітним ФП [32]. На рис. 4 маємо два максимуми і два стрибки для ентропії, а коли одноіонної анізотропії нема, то буде тільки один максимум та стрибок величини ентропії в точці ФП між АФМ та ФМ фазами.

На рис. 5 показана польова залежність магнітної ентропії $\sigma(h)$ при $t = 0,16$ та при $t = 0,22$. Для першого випадку $t_{tkr1} < t < t_{tkr2}$ і при намагнічуванні існує тільки один ФП 1-го роду – з АФМ фази до ФМ, при якому є скінченний стрибок $\Delta\sigma_{AFM-FM}$ величини ентропії. Цікаво, що цьому стрибку передують максимум $\sigma(h)$, в межах якого вона змінюється неперервно. Цей максимум є наслідком швидкого намагнічування, як це видно з рис. 2. Проте величина стрибка ентропії $\Delta\sigma_{AFM-FM}$ виявляється незначною. При більш високій температурі, $t = 0,22$, яка відповідає нерівності $t > t_{tkr2}$ стрибків ентропії нема, а в залежності $\sigma(h)$ є злам, що свідчить

про наявність ФП 2-го роду з АФМ в ФМ фазу. В малих полях для $\sigma(h)$ може існувати широкий максимум, який щезає при високих температурах, значно більших t_{tkr2} .

7. Висновки

Показано, що при намагнічуванні ізінгівського АФМ з легкоплощинною одноіонною анізотропією і спінами іонів $S = 1$ може відбуватися два ФП 1-го роду. Завдяки легкоплощинній магнітній анізотропії перший є ізоструктурним ФП, при якому відбувається перехід між двома АФМ фазами з різними значеннями намагніченостей підґраток. При $T = 0$ такий перехід відбувається як магнітний квантовий ФП [33–38], коли основний стан іонів підґратки 2 змінюється на синглетний $| -1 \rangle \rightarrow | 0 \rangle$ і мінімізується (стає меншою) енергія одноіонної анізотропії. При $T \neq 0$ мінімізації енергії одноіонної анізотропії при ізоструктурному ФП відповідає стрибкоподібна зміна іонних станів, коли до точки переходу найбільшою у іонів підґратки 2 є заселеність рівня з проекцією спіна, рівною -1 , а після переходу найбільшу заселеність мають іонні стани з нульовою проекцією спіна. Таким чином, навіть при $T \neq 0$ ізоструктурний ФП можна розглядати як магнітний квантовий ФП. В інтервалі полів стійкості від $h_L(t)$ до $h_R(t)$ може бути неоднорідний багатодоменний АФМ стан, домени якого відрізняються величиною спінів підґраток.

Індуковані магнітним полем ФП призводять до стрибків величини магнітної ентропії. Величина стрибка ентропії для обох ФП 1-го роду додатна, а польова залежність магнітної ентропії при ізоструктурному ФП мало відрізняється від її ходу при ФП у ФМ фазу. Для більш високих температур, коли ізоструктурний ФП щезає, може спостерігатися досить вузький максимум у польовій залежності магнітної ентропії. Він стає більш гострим, коли температура наближається до трикритичної температури ізоструктурного ФП. Важливо, що за рахунок конкуренції ізінгівської обмінної взаємодії та одноіонної легкоплощинної анізотропії ізоструктурний ФП 1-го роду відбувається в магнітному полі, значно меншому поля ФП з АФМ до ФМ фази. Отже, за рахунок такої конкуренції взаємодій можна очікувати значного магнітокалоричного ефекту в менших за величиною зовнішніх магнітних полях.

Робота В.М.Л. підтримувалася грантами бюджетної програми КРКВК 6541230 та наукової програми 0117U00236 Відділення фізики та астрономії НАН України.

1. I.S. Jacobs. Spin-flopping in MnF_2 by high magnetic fields. *J. Appl. Phys.* **32**, S61 (1961).
2. I.S. Jacobs, P.E. Lawrence. Metamagnetic phase transition and hysteresis in FeCl_2 . *Phys. Rev.* **164**, 866 (1967).
3. J.M. Kincaid, E.G.D. Cohen. Phase diagrams of liquid helium mixtures and metamagnets: experiment and mean field theory. *Phys. Rep.* **22**, 57 (1975).
4. E. Stryjewski, N. Giordano. Metamagnetism. *Adv. Phys.* **26**, 487 (1977).
5. G.A. Candela, L.J. Swartzendruber, J.S. Miller, M.J. Rice. Metamagnetic properties of one-dimensional decamethylferrocenium 7,7,8,8-tetracyano-*p*-quinodimethanide (1:1): $[\text{Fe}(\eta^5\text{-C}_5\text{Me}_5)_2]^+(\text{TCNQ})^-$. *J. Am. Chem. Soc.* **101**, 2755 (1979).
6. M. Roger, J.H. Hetherington, J.M. Delrieu. Magnetism in solid He^3 . *Rev. Mod. Phys.* **55**, 1 (1983).
7. T.T.M. Palstra, G.J. Nieuwenhuys, J.A. Mydosh, K.H.J. Buschow. Mictomagnetic, ferromagnetic, and antiferromagnetic transitions in $\text{La}(\text{Fe}_x\text{Al}_{1-x})_{13}$ intermetallic compounds. *Phys. Rev. B* **31**, 4622 (1985).
8. V. Baltz, A. Manchon, M. Tsoi, T. Moriyama, T. Ono, Y. Tserkovnyak. Antiferromagnetic spintronics. *Rev. Mod. Phys.* **90**, 015005 (2018).
9. A.S. Borovik-Romanov. *Antiferromagnetism* (Itogi Nauki, Izd-vo AN SSSR, 1962) (in Russian).
10. A.F. Lozenko, V.I. Malinovskii, S.M. Ryabchenko. High-frequency antiferromagnetic resonance in anhydrous NiCl_2 . *Sov. Phys. JETP* **33**, 750 (1971).
11. A.F. Lozenko, S.M. Ryabchenko. Antiferromagnetic resonance in layered CoCl_2 and NiCl_2 crystals. *Sov. Phys. JETP* **38**, 538 (1974).
12. A.F. Lozenko, P.E. Parkhomchuk, S.M. Ryabchenko, P.A. Trotsenko. Anomalous magnetostriction in the layered antiferromagnet MnCl_2 . *J. Exp. Theor. Phys.* **89**, 1237 (1985).
13. V.M. Kalita, A.F. Lozenko, S.M. Ryabchenko. Analysis of the temperature–field dependence of the magnetostriction in the antiferromagnetic phase of the easy-plane antiferromagnet CoCl_2 . *Low Temp. Phys.* **26**, 489 (2000).
14. V.M. Kalita, A.F. Lozenko, S.M. Ryabchenko, P.A. Trotsenko. The role of defects in the formation of the multidomain state of easy-plane antiferromagnets with magnetoelastic interaction. *J. Exp. Theor. Phys.* **99**, 1054 (2004).
15. V.M. Kalita, A.F. Lozenko, S.M. Ryabchenko, P.A. Trotsenko. Magnetoelasticity and domain structure in antiferromagnetic crystals of the iron-group dihalides. *Low Temp. Phys.* **31**, 794 (2005).
16. T. Oguchi. Theory of magnetism in $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$. *J. Phys. Soc. Jpn.* **20**, 2236 (1965).

17. K. Katsumata. Metamagnetic phase transition and anomalous hysteresis in $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$. *J. Phys. Soc. Jpn.* **39**, 42 (1975).
18. J. Hirte, H. Weitzel, N. Lehner. Critical behavior and critical endpoints of $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ and $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ in an applied magnetic field. *Phys. Rev. B* **30**, 6707 (1984).
19. G.C. DeFotis, B. Lee, H.A. King, J. Hammann. Magnetization and susceptibility of $\text{FeCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$. *J. Magn. Magn. Mater.* **177**, 173 (1998).
20. Y. Narumi, K. Katsumata, T. Nakamura, Y. Tanaka, S. Shimomura, T. Ishikawa, M. Yabashi. The coexistence of magnetic phases at the first-order phase transition of a metamagnet $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ studied by x-ray diffraction. *J. Phys. Condens. Matter* **16**, L57 (2004).
21. A.K. Zvezdin, V.M. Matveev, A.A. Mukhin, A.I. Popov. *Rare-Earth Ions in Magnetically Ordered Crystals* (Nauka, 1985) (in Russian).
22. M.F. Collins, O.A. Petrenko. Triangular antiferromagnets. *Can. J. Phys.* **75**, 605 (1997).
23. V.M. Kalita, V.M. Loktev. On the sequence of quantum (meta) magnetic transitions in Ising antiferromagnets with single-ion anisotropy. *Low Temp. Phys.* **31**, 619 (2005).
24. D.P. Landau. Magnetic tricritical points in Ising antiferromagnets. *Phys. Rev. Lett.* **28**, 449 (1972).
25. W. Selke. Anomalies in Ising metamagnets. *Z. Phys. B* **101**, 145 (1996).
26. E.S. Tsuvarov, F.A. Kassin-Ogly, A.I. Proshkin. Ordering and frustrations in generalized Ising chain. *J. Phys. Conf. Ser.* **1389**, 012008 (2019).
27. T. Nagamiya, K. Yosida, R. Kubo. Antiferromagnetism. *Adv. Phys.* **42**, N 13, 1 (1955).
28. A.R. Fert, P. Carrara, M.C. Lanusse, G. Mischler, J.P. Renoules. Transition de phase metamagnetique du bromure ferreux. *J. Phys. Chem. Solids* **34**, 223 (1973).
29. V.M. Loktev, V.S. Ostrovskii. The peculiarities of statics and dynamics of magnetic insulators with single-ion anisotropy. *Fiz. Nizk. Temp.* **20**, 983 (1994).
30. V.G. Baryakhtar, I.N. Vitebskii, D.A. Yablonskii. To the theory of metamagnetic phase transitions. *Sov. Phys. Solid State* **19**, 1249 (1977).
31. K. Katsumata, H. Aruga Katori, S.M. Shapiro, G. Shirane. Neutron-scattering studies of a phase transition in the metamagnet FeBr_2 under external magnetic fields. *Phys. Rev. B* **55**, 11466 (1997).
32. G.Yu. Lavanov, V.M. Kalita, V.M. Loktev. Isostructural magnetic phase transitions and the magnetocaloric effect in Ising antiferromagnets. *Low Temp. Phys.* **40**, 1053 (2014).
33. G.Y. Lavanov, V.M. Kalita, I.M. Ivanova, V.M. Loktev. Magnetic quantum phase transitions and entropy in Van Vleck magnet. *J. Magn. Magn. Mater.* **416**, 466 (2016).
34. T.I. Lyashenko, V.M. Kalita, V.M. Loktev. Effect of the exchange interaction anisotropy on the magnetic quantum phase transitions in dimerized antiferromagnets. *Low Temp. Phys.* **43**, 1002 (2017).
35. V.M. Kalita, I.M. Ivanova, V.M. Loktev. Quantum effects of magnetization of an easy-axis ferromagnet with $S = 1$. *Theor. Math. Phys.* **173**, 1620 (2012).
36. Ph.N. Klevets, O.A. Kosmachev, Yu.A. Fridman. Phase transitions in $S = 1$ antiferromagnet with Ising-like exchange interaction and strong easy-plane single-ion anisotropy. *J. Magn. Magn. Mater.* **330**, 91 (2013).
37. O.A. Kosmachev, Y.A. Fridman, B.A. Ivanov. Phase states of a magnetic material with the spin $S = 2$ and the isotropic exchange interaction. *JETP Letters* **105**, 453 (2017).
38. A.G. Meleshko, P.N. Klevets, G.A. Gorelikov, O.A. Kosmachev, Y.A. Fridman. Supersolid magnetic phase in the two-dimensional Ising-like antiferromagnet with strong single-ion anisotropy. *Phys. Solid State* **59**, 1739 (2017).

Одержано 08.07.20

V.M. Kalita, G. Yu. Lavanov, V.M. Loktev

MAGNETIZATION AND MAGNETOCALORIC EFFECT IN ANTIFERROMAGNETS WITH COMPETING ISING EXCHANGE AND SINGLE-ION ANISOTROPIES

S u m m a r y

The magnetization of a two-sublattice Ising antiferromagnet with easy-plane single-ion anisotropy, which is accompanied by two phase transitions, has been studied. The both phase transitions are induced by the magnetic field. One of them is isostructural, i.e., the system symmetry remains unchanged and a transition between two antiferromagnetic states with different sublattice magnetizations takes place. The other phase transition occurs when the antiferromagnetic state transforms into the ferromagnetic one. At both phase transitions, the field dependence of the system entropy has two successive positive jumps, which is not typical of ordinary antiferromagnets. On the other hand, if the temperature of the system is higher than the tricritical temperature of the isostructural phase transition, there appears a continuous maximum in the field dependence of the entropy.