

МАГНИТНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ КВАЗИОДНОМЕРНЫХ СУПЕРАНТИФЕРРОМАГНЕТИКОВ ИЗИНГА FeTAC И $\text{MCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ ($\text{M} = \text{Co}, \text{Fe}$). АППРОКСИМАЦИИ ЦЕПОЧЕЧНЫМИ КЛАСТЕРАМИ $L \times \infty$ И $L \times L \times \infty$

*М. А. Юрищев**

*Институт проблем химической физики Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 18 января 2005 г.

Исследовано температурное поведение начальных статических восприимчивостей в двумерной и трехмерной решетках Изинга с пространственно-анизотропными связями. Использовано приближение исходной бесконечной решетки ансамблем независимых цепочечных кластеров $L \times \infty$ (в двух измерениях) и $L \times L \times \infty$ (в трех измерениях), вытянутых вдоль направления с доминирующим взаимодействием J . В рамках кластерно-цепочечного подхода количественно описаны во всем интервале измеренных температур (как выше, так и ниже критической точки) имеющиеся экспериментальные данные по магнитной восприимчивости двумерного анизотропного изинговского магнетика $[(\text{CH}_3)_3\text{NH}]\text{FeCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (FeTAC) и трехмерных квазиодномерных магнетиков $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ и $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$. Предложен и обоснован способ определения относительного межцепочечного взаимодействия J'/J по величине максимума восприимчивости, что позволило увеличить точность оценок параметра J'/J более чем на порядок.

PACS: 05.50.+q, 75.10.Nk, 75.30.Cr

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время известно большое число веществ, магнитные взаимодействия в которых носят изинговский характер [1, 2]. Несмотря на предельную простоту закона взаимодействия, расчет макроскопических характеристик таких материалов сопряжен, к сожалению, с большими трудностями. Это относится, в частности, к магнитной восприимчивости. Любопытно, что даже в случае точно решаемых двумерных моделей Изинга для продольной компоненты восприимчивости до сих пор не удалось получить строгого замкнутого выражения. Больше того, есть основания считать, что такого выражения в обычных дифференциально-конечных (голомных) функциях математической физики попросту не существует [3–5] (см. также [6]).

Предметом наших исследований являются квазиодномерные магнитные системы Изинга. Мы будем

рассматривать два типа таких систем: двумерные (2D) анизотропные решетки с прямоугольной ячейкой (константы связи J и J' , $|J'/J| \leq 1$) и трехмерные (3D) простые кубические решетки с преобладающим взаимодействием J вдоль одного пространственного направления и равными между собой константами взаимодействиями J' вдоль двух других ортогональных направлений.

Магнитная структура кристаллов соли $[(\text{CH}_3)_3\text{NH}]\text{FeCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (FeTAC) [7–10] принадлежит к 2D-типу: она состоит из взаимодействующих спиновых цепочек, выстроенных в плоскости. В кристаллах же солей $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ [11–14] и $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ [15–17] магнитные цепочки ионов металла связаны в 3D-систему. Все названные материалы представляют собой ярко выраженные квазиодномерные изинговские суперантиферромагнетики ($J > 0$ и $J' < 0$) с эффективными спинами магнитоактивных центров $1/2$. С понижением температуры в них происходит антиферромагнитное

*E-mail: yur@itp.ac.ru

упорядочение ферромагнитно упорядоченных цепочек спинов. Кривая магнитной восприимчивости имеет характерный максимум при температуре T_{max} , которая превышает температуру фазового перехода T_c . Сам фазовый переход на кривой восприимчивости проявляется в виде точки перегиба с бесконечно крутой (в идеале) касательной в ней.

Расчет восприимчивости анизотропной 2D-решетки Изинга во всем диапазоне температур (теоретически от нуля до бесконечности) был дан в работе [18]. Использованное в этой работе приближение (расщепление многоспиновых корреляторов) для полностью изотропной модели обеспечивает точность в пределах 0.35%. Мы увидим, однако, что при анизотропии взаимодействий всего только $J'/J = -0.1$ ($J > 0$) погрешности для координат максимума восприимчивости возрастают уже до десятков процентов. Это делает непригодным данное приближение для практических приложений к квазиодномерным системам.

Еще хуже обстоит дело в 3D-случае. Наиболее качественные сведения о восприимчивости здесь дают методы разложения в степенные ряды. Если для полностью изотропной простой кубической решетки Изинга высокотемпературные разложения для начальной продольной восприимчивости получены до членов 25-го [19, 20] и даже 32-го порядков [21], то для анизотропной решетки они известны лишь до членов 10-го [22] или 11-го [23] порядка. К сожалению, при увеличении анизотропии взаимодействий конечные ряды начинают быстро расстраиваться. В дальнейшем будет наглядно продемонстрировано, что имеющиеся высокотемпературные ряды (даже после улучшения их сходимости с помощью аппроксимант Падé) [24] приводят к неприемлемо большим ошибкам для суперантиферромагнитной восприимчивости при $|J'|/J = 10^{-2}$; нам же при интерпретации опытных данных нужно будет рассматривать модель с еще меньшим значением этого параметра.

В предлагаемой работе для расчета восприимчивостей использован кластерный подход. Этот метод, как известно [25–27], с увеличением линейных размеров кластеров обеспечивает для различных характеристик (включая восприимчивость) экспоненциально быстрое приближение к характеристикам бесконечной системы всюду, за исключением узкой критической области; последняя, впрочем, для обсуждаемых квазиодномерных материалов в настоящее время экспериментально неразрешима.

Учитывая специфику анизотропии, мы берем цепочечные кластеры — полоски $L \times \infty$ и параллелепипеды (бруски) $L \times L \times \infty$ соответственно в 2D-

и 3D-пространствах, причем подсистемы берем бесконечно протяженные в направлении с преобладающим взаимодействием J . Чтобы избежать нежелательных поверхностных эффектов, накладываем периодические граничные условия в поперечных направлениях как полосок, так и брусков. Кроме того, чтобы при этом не возникало фрустраций, целочисленный параметр L (размер, измеренный в единицах постоянной решетки) у нас будет принимать только четные значения: $L = 2, 4, \dots$; исключение составит лишь одинарная цепочка ($L = 1$). Таким образом, при $L > 1$ магнитная структура суперантиферромагнитного кластера $L^{d-1} \times \infty$ (d — размерность пространства; $d = 2, 3$) представляет собой две одинаковые взаимопроникающие подрешетки, магнитные моменты которых направлены навстречу друг другу.

Во втором разделе настоящей работы представлены формулы для восприимчивостей: общие, пригодные для расчета на компьютере, и точные асимптотические; громоздкие аналитические формулы для малоцепочечных подсистем вынесены в Приложение. В третьем разделе определены поперечные размеры полосок, которые обеспечивают необходимую точность для описания восприимчивости FeTAS, а в следующем, четвертом, разделе такое описание выполнено фактически. Пятый и шестой разделы содержат материал, аналогичный предыдущим двум разделам, но уже для 3D-систем. Наконец, в седьмом разделе кратко суммированы основные результаты работы.

2. РАСЧЕТ ВОСПРИИМЧИВОСТЕЙ

Гамильтониан модели Изинга имеет вид

$$H = -\frac{1}{2}J \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i^z \sigma_j^z - \frac{1}{2}J' \sum_{[i,j]} \sigma_i^z \sigma_j^z, \quad (1)$$

где матрицы Паули σ_i^z локализованы в узлах квадратной или простой кубической решетки. Суммирование $\langle i, j \rangle$ и $[i, j]$ идут по парам ближайших соседей вдоль пространственных направлений с константами взаимодействия соответственно J и J' .

Согласно теории Кубо линейного отклика системы на внешнее воздействие [28, 29], тензор начальных статических восприимчивостей равен

$$\chi_{\mu\nu} = -\beta \langle M_\nu \rangle \langle M_\mu \rangle + \int_0^\beta d\beta' \langle M_\nu(\beta') M_\mu \rangle. \quad (2)$$

В этой формуле индексы « μ » и « ν » принимают значения x, y и z ; $\beta = 1/k_B T$ — обратная температура

в энергетических единицах, k_B — постоянная Больцмана; угловые скобки означают усреднение по распределению Гиббса; M_μ — проекция магнитного момента системы и $M_\nu(\beta) = e^{\beta H} M_\nu e^{-\beta H}$ — компонента магнитного момента в представлении Мацубары.

Отметим, что для суперантиферромагнетиков как для систем с нулевой суммарной спонтанной намагниченностью подрешеток магнитный момент в отсутствие внешнего поля равен нулю: $\langle M_\nu \rangle = 0$. Таким образом, первый член в правой части равенства (2) в нашем случае исчезает.

Составляющая магнитного момента, параллельная оси анизотропии z , равна

$$M_z = \frac{1}{2} g_{\parallel} \mu_B \sum_{i=1}^N \sigma_i^z, \quad (3)$$

где g_{\parallel} — продольная часть g -фактора, μ_B — магнетон Бора, N — общее число частиц в системе. Поскольку M_z коммутирует с гамильтонианом (1) и $\langle M_z \rangle = 0$, после подстановки (3) в (2) для начальной молярной продольной (параллельной) восприимчивости получаем

$$\begin{aligned} \chi_{\parallel}(T) &\equiv \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{N_A}{N} \chi_{zz} = \\ &= \frac{N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2}{4k_B T} \lim_{N \rightarrow \infty} \sum_{j=1}^N \langle \sigma_{i_0}^z \sigma_j^z \rangle_N, \quad (4) \end{aligned}$$

где N_A — число Авогадро; i_0 — произвольный фиксированный узел однородной решетки, от выбора которого χ_{\parallel} не зависит. Вычисление продольной восприимчивости включает в себя расчет и суммирование всех парных спин-спиновых корреляционных функций и затем переход к пределу бесконечной решетки.

Продольные восприимчивости для одно-, двух- и четырехцепочечных моделей Изинга известны в аналитическом виде (см. Приложение). Как показывает анализ этих формул, температурный ход продольной восприимчивости суперантиферромагнитных кластеров качественно правильно воспроизводит поведение опытных данных. Кривые восприимчивости имеют пик (см. рис. 1), причем с увеличением анизотропии решетки его величина неограниченно возрастает. Ниже температуры максимума на кривой восприимчивости есть точка перегиба, приближенно соответствующая критической точке полной системы. С увеличением числа цепочек в подсистемах наклон касательной в этой точке перегиба возрастает и касательная стремится занять вертикальное положение.

Для нахождения восприимчивостей при большем числе цепочек в системе приходится ограничивать-

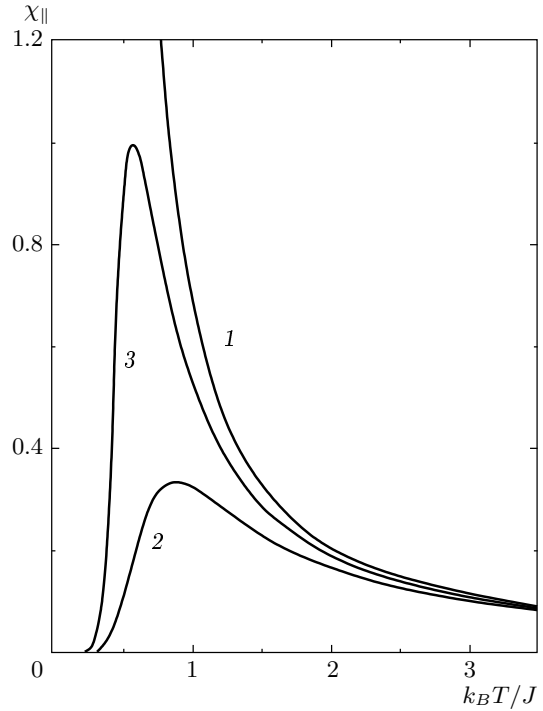


Рис. 1. Продольная восприимчивость (в единицах $N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2 / J = 1$) цепочечных моделей Изинга в зависимости от нормированной температуры: 1 — линейная ферромагнитная цепочка, 2 — двойная цепочка с $z'J'/J = -0.5$ ($J > 0$) и 3 — четырехцепочечная трубка с $J > 0$ и $z'J'/2J = -0.1$

ся численными подходами. Формула, пригодная для расчета продольной восприимчивости гиперполоски $L^{d-1} \times \infty$ методом трансфер-матрицы, имеет вид [30, 31]

$$\begin{aligned} \chi_{\parallel}^{(L^{d-1} \times \infty)}(T) &= \frac{N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2}{4L^{d-1} k_B T} \times \\ &\times \sum_s \frac{\lambda_1 + \lambda_s}{\lambda_1 - \lambda_s} |f_s^+(\hat{\sigma}_1 + \dots + \hat{\sigma}_n) f_1|^2. \quad (5) \end{aligned}$$

В этом равенстве штрих у знака суммы означает пропуск члена с $s = 1$; $n = L^{d-1}$ — число цепочек в кластере; λ_s и f_s — соответственно собственные значения и отвечающие им собственные векторы трансфер-матрицы, причем λ_1 — наибольшее собственное значение (в силу теоремы Перрона [32] оно невырождено); $\hat{\sigma}_k$ — спиновые матрицы:

$$\hat{\sigma}_k = 1 \times \dots \times 1 \times \sigma_z \times 1 \times \dots \times 1, \quad (6)$$

где в прямом произведении из n сомножителей 2×2 -матрица Паули σ_z стоит в k -й позиции среди

единичных матриц второго порядка. Наконец, сама трансфер-матрица V определена элементами

$$\langle \sigma_1, \dots, \sigma_n | V | \sigma'_1, \dots, \sigma'_n \rangle = \exp \left[K \sum_{i=1}^n \sigma_i \sigma'_i + \frac{1}{2} K' \sum_{[i,j]} (\sigma_i \sigma_j + \sigma'_i \sigma'_j) \right], \quad (7)$$

где $\sigma_i = \pm 1$ — одномерно упорядоченные изинговские спиновые переменные в поперечном сечении решетки $L^{d-1} \times \infty$, $K = J/2k_B T$ и $K' = J'/2k_B T$. Матрица V имеет размеры $2^n \times 2^n$. Она вещественна, симметрична и все ее элементы больше нуля.

Выражение (5) следует из (4), т. е., в сущности, из теории Кубо. Несколько иную по виду, но эквивалентную по содержанию формулу для продольной восприимчивости дает теория возмущений, развитая для трансфер-матрицы по внешнему полю [33, 34].

Основная проблема расчета восприимчивости сведена, таким образом, к решению задачи на собственные значения и собственные векторы трансфер-матрицы V . Эту задачу мы решали либо путем прямых численных диагонализаций исходной матрицы V , либо путем диагонализации субблоков, из которых состоит квазидиагональная форма трансфер-матрицы после использования симметрий кластера.

Снова стартуя с формулы Кубо (2), нетрудно показать, что выражение для поперечной (перпендикулярной) восприимчивости χ_{\perp} представляет собой линейную комбинацию уже из конечного числа локальных σ^z -корреляторов. Такие корреляторы и χ_{\perp} были вычислены для двумерных, но, к сожалению, лишь изотропных решеток Изинга [35–37].

Имеющиеся аналитические формулы для поперечных восприимчивостей линейной и двойной цепочек Изинга выписаны в Приложении. На рис. 2 показаны температурные зависимости для этих восприимчивостей. На рисунке видно, что для квазиодномерных систем поперечная восприимчивость в противоположность продольной компоненте во всем диапазоне температур мало отклоняется от поведения строго линейной цепочки. Поэтому в случае выраженных квазиодномерных магнетиков на практике можно ограничиваться формулой для поперечной восприимчивости одномерной цепочки.

Магнетик Изинга является легкоосным. Воспри-

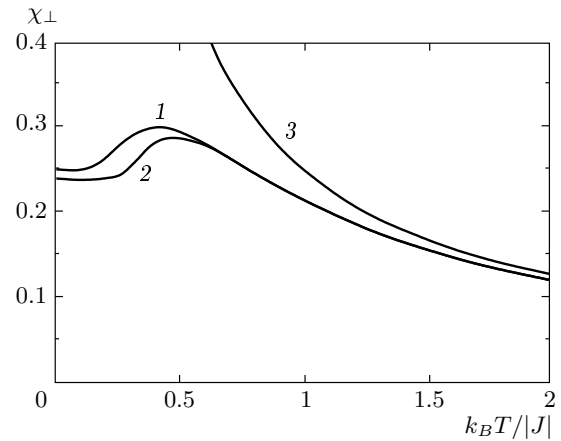


Рис. 2. Температурный ход начальной поперечной восприимчивости (в единицах $N_A g_{\perp}^2 \mu_B^2 / J = 1$): 1 — одномерная цепочка ($J' = 0$), 2 — двойная цепочка с $z'|J'/J| = 0.1$ и 3 — восприимчивость свободных спинов ($J = J' = 0$)

имчивость такого материала в поликристаллическом (порошкообразном) состоянии равна

$$\chi_p = \frac{1}{3} \chi_{\parallel} + \frac{2}{3} \chi_{\perp}. \quad (8)$$

При больших температурах продольная восприимчивость магнетика Изинга удовлетворяет закону Кюри–Вейсса

$$\chi_{\parallel}(T) \approx \frac{C_{\parallel}}{T - \vartheta}, \quad T \rightarrow \infty. \quad (9)$$

Это соотношение вытекает уже из первых членов высокотемпературного ряда для восприимчивости бесконечной решетки Изинга с анизотропными взаимодействиями [22, 23]. В равенстве (9) константа Кюри равна

$$C_{\parallel} = \frac{N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2}{4k_B}, \quad (10)$$

а для температуры Кюри–Вейсса имеем

$$\vartheta = \frac{1}{k_B} \left(J + \frac{1}{2} z' J' \right). \quad (11)$$

Здесь z' — число ближайших цепочек в системе: $z' = 2$ для плоской модели и $z' = 4$ для 3D-решетки.

Как следует из точных низкотемпературных разложений [36, 38, 39], при $T \rightarrow 0$ продольная восприимчивость полной системы в двух и большем числе измерений экспоненциально мала, а в самой точке

абсолютного нуля температуры она строго равна нулю:

$$\chi_{\parallel}(0) = 0. \quad (12)$$

Отметим еще раз, что поскольку из-за использования четных значений L магнитный момент основного состояния наших кластеров равен нулю и поскольку бесконечно малое внешнее поле при этом не может индуцировать никакого магнитного момента, требующего на свое создание производства конечной работы, граничное условие (12) в случае подсистем $L^{d-1} \times \infty$ ($d > 1$) будет автоматически выполнено.

Поперечная восприимчивость при высоких температурах подчинена закону Кюри [36, 40]:

$$\chi_{\perp}(T) \approx \frac{C_{\perp}}{T}, \quad T \rightarrow \infty. \quad (13)$$

(Это совпадает с магнитной восприимчивостью свободных спинов.) В формуле (13) константа Кюри равна

$$C_{\perp} = \frac{N_A g_{\perp}^2 \mu_B^2}{4k_B}, \quad (14)$$

где g_{\perp} — поперечная компонента g -фактора. При низких температурах ($T \rightarrow 0$) поперечная восприимчивость, в отличие от продольной, имеет постоянное значение, не равное нулю [35, 36] (см. также [40]). Для интересующих нас анизотропных решеток имеем

$$\chi_{\perp}(0) = \frac{N_A g_{\perp}^2 \mu_B^2}{2(2|J| + z'|J'|)}. \quad (15)$$

Из соотношений (11), (14) и (15) для относительной величины межцепочечных взаимодействий суперантиферромагнетика находим выражение

$$\frac{|J'|}{J} = \frac{z'}{2} \frac{C_{\perp} - \vartheta \chi_{\perp}(0)}{C_{\perp} + \vartheta \chi_{\perp}(0)}. \quad (16)$$

Отсюда при $|J'|/J > 0$ следует ограничение

$$\chi_{\perp}(0) < \frac{C_{\perp}}{\vartheta}. \quad (17)$$

Таким образом, измерения восприимчивости при высоких температурах определяют ее возможную величину при предельно низких температурах. Мы проверили и нашли, что опытные данные для FeTAC [7] удовлетворяют неравенству (17).

Порошковая восприимчивость при высоких температурах, как это следует из соотношений (8)–(11),

(13) и (14), также убывает по гиперболическому закону

$$\chi_p(T) \approx \frac{C}{T - \Theta} \quad (T \rightarrow \infty), \quad (18)$$

где

$$C = \frac{N_A (g_{\parallel}^2 + 2g_{\perp}^2) \mu_B^2}{12k_B}, \quad (19)$$

$$\Theta = \frac{g_{\parallel}^2}{(g_{\parallel}^2 + 2g_{\perp}^2)k_B} \left(J + \frac{1}{2} z' J' \right). \quad (20)$$

При нулевой температуре вклад в порошковую восприимчивость вносит лишь поперечная компонента:

$$\chi_p(0) = \frac{N_A g_{\perp}^2 \mu_B^2}{3(2|J| + z'|J'|)}. \quad (21)$$

Из соотношений (19)–(21) и неравенства $(g_{\parallel}^2 - 2g_{\perp}^2)^2 \geq 0$ вытекает ограничение на величину относительных взаимодействий в анизотропной системе:

$$\left| \frac{J'}{J} \right| \leq \frac{2}{z'} \frac{C - 4\Theta \chi_p(0)}{C + 4\Theta \chi_p(0)}. \quad (22)$$

Из этого неравенства, в свою очередь, получаем ограничение сверху на величину низкотемпературного пьедестала порошковой восприимчивости магнетика с $\Theta > 0$:

$$\chi_p(0) < \frac{C}{4\Theta}. \quad (23)$$

В разд. 6 мы показываем, что имеющиеся экспериментальные данные для соли $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ [11] действительно подтверждают это неравенство.

3. АНАЛИЗ СХОДИМОСТИ КЛАСТЕРНЫХ РАЗЛОЖЕНИЙ В ДВУХ ИЗМЕРЕНИЯХ

Прежде чем применять то или иное приближение для количественного описания экспериментальных данных, нужно сначала убедиться в том, что систематические ошибки взятого приближения меньше или хотя бы не превышают погрешностей измерений.

Анализировать кластерные разложения на предмет их сходимости начнем с более простого, двумерного, случая. На рис. 3 и 4 изображены семейства кривых продольной восприимчивости для полюсов Изинга $L \times \infty$, имеющих ширины от $L = 2$ до $L = 10$. Семейства представлены при двух крайних

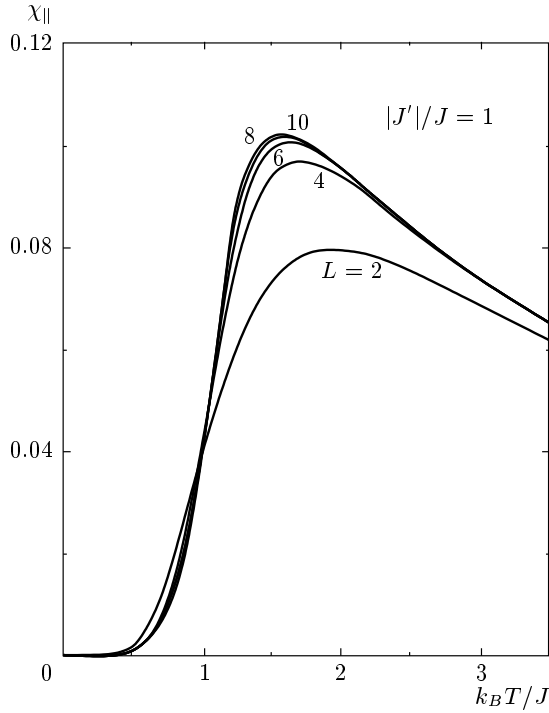


Рис. 3. Продольная восприимчивость (в единицах $N_A g_{||}^2 \mu_B^2 / J = 1$) суперантиферромагнитных полосок Изинга $L \times \infty$ с ширинами $L = 2 - 10$ при $|J'|/J = 1$

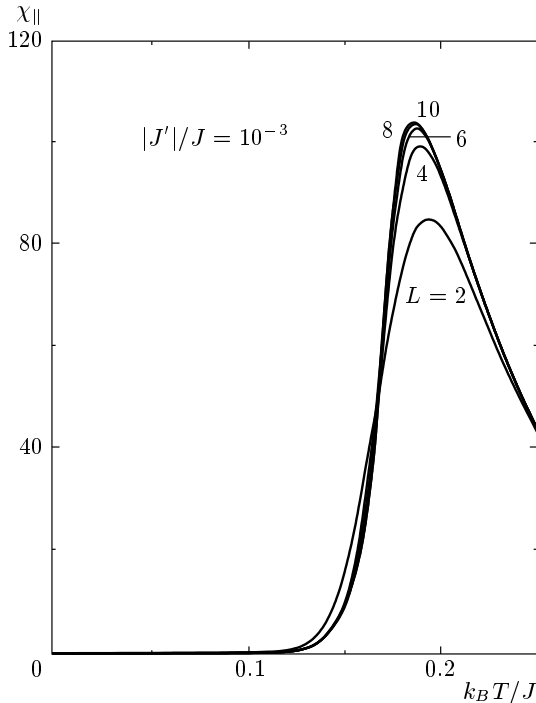


Рис. 4. То же, что на рис. 3, но при $|J'|/J = 10^{-3}$

значениях параметра, характеризующего анизотропию решетки: $|J'|/J = 1, 10^{-3}$. Именно внутри этого интервала лежат относительные величины межцепочечных обменных взаимодействий для большинства экспериментально реализованных магнетиков Изинга; при меньших значениях $|J'|/J$ существенными становятся диполь-дипольные взаимодействия.

Все расчеты были выполнены на компьютере. Восприимчивость вычислялась по формуле (5). При этом собственные значения и собственные векторы находились путем прямой численной диагонализации исходных трансфер-матриц, порядки которых не превышали $2^{10} = 1024$. Для проведения диагонализации были использованы Си-функции tred2.c и tqli.c [41]. Наша программа давала также координаты максимума.

На рис. 3 и 4 хорошо виден процесс сходимости восприимчивости при увеличении поперечных размеров подсистем. В обоих крайних случаях, $|J'|/J = 1$ и $|J'|/J = 10^{-3}$, кривые для полосок с ширинами $L = 8, 10$ уже практически слиты, т. е. в пределах разрешимости рисунка достигнуты значения бесконечной $2D$ -решетки.

Достаточно объективную количественную информацию о точности приближения в целом можно получить, сравнивая величины продольной восприимчивости в максимуме. Максимум расположен в предкритической области, и сходимость в нем происходит если еще не по степенному, то уже по ослабленному экспоненциальному закону.

В табл. 1 представлены значения координат максимума продольной восприимчивости цилиндров Изинга. Экстраполяция к термодинамическому пределу $L = \infty$ для положения максимума и его величины проведена с помощью преобразования Шанкса ([26], с. 225), при котором исходная последовательность $\{a_l\}$ переходит в новую $\{a'_l\}$, причем

$$a'_l = \frac{a_{l-1}a_{l+1} - a_l^2}{a_{l-1} + a_{l+1} - 2a_l}. \quad (24)$$

Результаты, собранные в табл. 1, показывают следующее. Относительные погрешности оценок для температуры максимума монотонно убывают по мере ослабления межцепочечных взаимодействий: с 1.3% при $|J'|/J = 1$ до 0.27% при $|J'|/J = 10^{-3}$. Далее, величина максимума продольной восприимчивости при уменьшении $|J'|/J$ возрастает по гиперболическому закону

$$\frac{J\chi_{||}^{(max)}}{N_A g_{||}^2 \mu_B^2} \approx \frac{0.1}{|J'|/J}. \quad (25)$$

Таблица 1. Координаты суперантиферромагнитного максимума (нормированная температура $k_B T_{max}/J$ и под ней $J\chi_{\parallel, max}^{(L \times \infty)}/N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2$) продольной восприимчивости при различных ширинах и анизотропиях циклических решеток Изинга $L \times \infty$. Экстраполяция на бесконечную $2D$ -решетку ($L = \infty$) проведена по схеме Шанкса (24) с трех полосок с ширинами $L = 6, 8, 10$. Здесь $\Delta = |J'|/J$, $J > 0$ и $J' < 0$

| L | $\Delta = 1$ | $\Delta = 10^{-1}$ | $\Delta = 10^{-2}$ | $\Delta = 10^{-3}$ |
|----------|--------------|--------------------|--------------------|--------------------|
| 2 | 1.957443 | 0.593380 | 0.301827 | 0.193399 |
| | 0.080142 | 0.853605 | 8.577071 | 85.786055 |
| 4 | 1.723455 | 0.563281 | 0.292302 | 0.189102 |
| | 0.097244 | 1.000137 | 10.019720 | 100.203811 |
| 6 | 1.640401 | 0.550014 | 0.287992 | 0.187135 |
| | 0.101008 | 1.034448 | 10.360714 | 103.612905 |
| 8 | 1.603729 | 0.543665 | 0.285905 | 0.186177 |
| | 0.102075 | 1.044801 | 10.463915 | 104.644760 |
| 10 | 1.587364 | 0.540669 | 0.284914 | 0.185721 |
| | 0.102404 | 1.048171 | 10.497584 | 104.981419 |
| ∞ | 1.57(2) | 0.538(3) | 0.2840(9) | 0.1853(5) |
| | 0.1026(2) | 1.050(2) | 10.51(2) | 105.1(2) |

Точность же оценок величины максимума, в отличие от $k_B T_{max}/J$, практически не зависит от анизотропии решетки и при ширинах $L = 10$ составляет примерно 0.2%. Этого вполне достаточно для количественного описания имеющихся экспериментальных данных.

Обсудим теперь точность приближения, использованного в работе [18]. Из данных табл. 1 находим, что максимум продольной восприимчивости $2D$ -модели с $|J'|/J=10^{-1}$ расположен при $k_B T_{max}/J = 0.538(3)$ и имеет величину $J\chi_{\parallel}^{(max)}/N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2 = 1.050(2)$. С другой стороны, согласно результатам ([18, рис. 5]), для того же суперантиферромагнетика координаты максимума равны (с учетом переопределения констант взаимодействия) $k_B T_{max}/J \approx 0.656$ и $J\chi_{\parallel}^{(max)} \approx 0.809$. Ошибки приближения [18], таким образом, здесь составляют 22% и 23% соответственно для температуры и величины максимума. Из-за больших погрешностей даже при малых анизотропиях взаимодействия теория [18] непригодна для приложений к эксперименту.

Эмпирически обнаруженный нами закон обратной пропорциональной зависимости максимума продольной восприимчивости суперантиферромагнетика от относительной величины межцепочечных взаимодействий (25) может быть интерпретирован следующим образом. Температура фазового перехода в $2D$ -решетке Изинга с анизотропными взаимодействиями подчинена уравнению [42]

$$\text{sh} \frac{|J|}{k_B T_c} \text{sh} \frac{|J'|}{k_B T_c} = 1. \tag{26}$$

При $|J'|/J \rightarrow 0$ из этого уравнения следует, что

$$\frac{|J'|}{J} \approx 2 \frac{k_B T_c}{J} \exp\left(-\frac{J}{k_B T_c}\right). \tag{27}$$

С другой стороны, в достаточно выраженном квазиодномерном суперантиферромагнетике продольная восприимчивость при температурах, лишь несколько превышающих температуру максимума, описывается формулой для продольной восприимчивости чисто одномерной цепочки Изинга. Кроме того, температура максимума близка к критической температуре, и это сближение возрастает с увеличением анизотропии решетки. Поэтому, считая $T_{max} \approx T_c$ и $\chi_{\parallel}^{(max)} \propto \chi_{\parallel}^{(1D)}(T_{max})$, из выражений (П.1) и (27) получаем

$$\frac{J\chi_{\parallel}^{(max)}}{N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2} \propto \left(\frac{|J'|}{J}\right)^{-1}. \tag{28}$$

Согласно данным табл. 1, соотношение (28) имеет силу в неожиданно широкой области — фактически с $|J'| = J$.

4. НАЧАЛЬНАЯ МАГНИТНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ МОНОКРИСТАЛЛОВ FeTAS

Триметиламмонийтрихлорид дигидрат железа (FeTAS, trimethylammonium iron trichloride dihydrate) в кристаллическом состоянии обладает наиболее сильно выраженными квазиодномерными плоскими магнитными структурами из всего семейства соединений с общей формулой $[(\text{CH}_3)_3\text{NH}]\text{MX}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, где M — металл (Co, Fe, Ni и др.), а X — хлор или бром (см. [8, 43] и имеющиеся там ссылки). Физические свойства FeTAS являются предметом интенсивных экспериментальных исследований.

Начальная статическая магнитная восприимчивость монокристаллов FeTAS измерена при темпе-

ратурах от 1.4 до 300 К [7]. При этом восприимчивость вдоль легкой оси намагничивания (кристаллографическая ось b) отождествляется с продольной восприимчивостью: $\chi_b \equiv \chi_{\parallel}$. Согласно работе [7] при температуре $T_{max} = 3.18(2)$ К она проходит через максимум, равный $\chi_b^{(max)} = 100$ см³/моль; температура фазового перехода, определенная по величине наибольшей крутизны продольной восприимчивости ниже T_{max} , составляет $T_c = 3.12(2)$ К (т.е. $T_{max}/T_c \approx 1.02$). При температурах существенно выше T_{max} восприимчивость подчинена закону Кюри–Вейсса.

В работе [7] опытные данные по восприимчивости были описаны количественно только в приближении линейной цепочки Изинга и поэтому лишь при температурах, превышающих T_{max} . Подгонка продольной восприимчивости строго одномерной модели Изинга к экспериментальным точкам на интервале между 6 и 18 К дала $C_b = C_{\parallel} = 5.52(4)$ см³ · К/моль (константа Кюри) и $\vartheta \approx J/k_B = 16.6(1)$ К [7]. Используя соотношение (10), отсюда получаем значение для продольной компоненты g -фактора: $g_{\parallel} = 7.67(3)$.

Авторы работы [7] предприняли также попытку оценить величину межцепочечных взаимодействий. Для этого они использовали известное выражение для восприимчивости квазиодномерной системы с учетом связей между цепочками в приближении молекулярного поля [44]:

$$\chi_{\parallel}^{(MFA)} = \chi_{\parallel}^{(1D)} / \left(1 - \frac{z'J'}{2C_{\parallel}} \chi_{\parallel}^{(1D)} \right). \quad (29)$$

Подгонка этой теоретической зависимости к данным по восприимчивости χ_{\parallel} на интервале от 3.2 К (т.е. снова выше T_{max}) до 18 К привела к приближенному значению $J'/J \approx -2 \cdot 10^{-3}$ [7].

В более поздней работе [8] были сообщены результаты измерений удельной теплоемкости соединения FeTAS. По этим данным критическая температура равна $T_c = 3.125(5)$ К, а $J/k_B = 17.7(3)$ К. Используя уравнение Онсагера (26), авторы работы [8] установили, что в FeTAS $|J'/J| = 1.3 \cdot 10^{-3}$.

Перейдем теперь к изложению наших результатов по FeTAS. Во-первых, заметим, что использование зависимости $k_B T_c/J$ от J'/J не есть наилучший способ определения параметра межцепочечных взаимодействий в квазиодномерных системах. Действительно, из формулы (27) вытекает связь относительных ошибок для нормированного межцепочечного

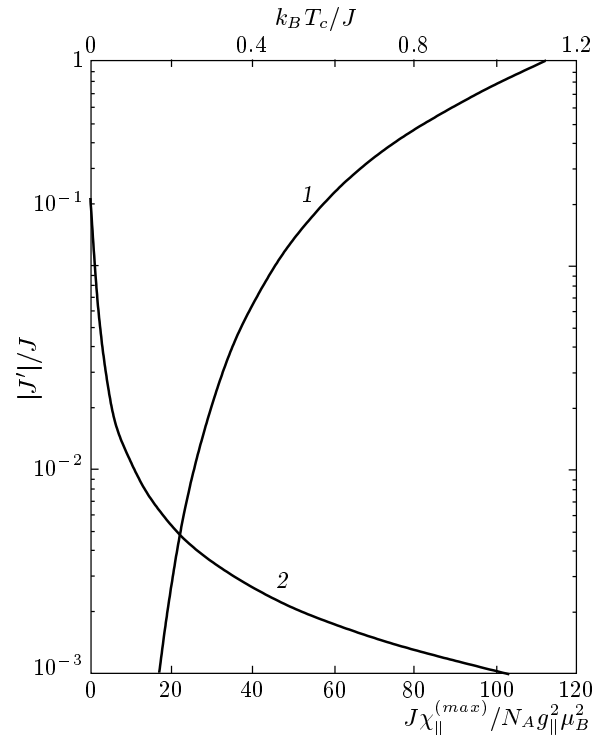


Рис. 5. Приведенная критическая температура (кривая 1) и величина максимума нормированной продольной восприимчивости (кривая 2) в зависимости от $|J'|/J$ в двумерной суперантиферромагнитной решетке Изинга

взаимодействия и приведенной температуры:

$$\delta \left(\frac{|J'|}{J} \right) = \left[1 + \left(\frac{k_B T_c}{J} \right)^{-1} \right] \delta \left(\frac{k_B T_c}{J} \right). \quad (30)$$

Следовательно, ошибка в оценке $|J'|/J$ по T_c нарастает с увеличением анизотропии взаимодействий (поскольку $k_B T_c/J$ при этом убывает).

В том же самом можно убедиться и другим способом. Решение трансцендентного уравнения (26) на компьютере не вызывает трудностей. Результаты представлены на рис. 5 (кривая 1). Примем, однако, во внимание погрешности входных величин. Возьмем снова, как и авторы работы [8], $T_c = 3.125 \pm 0.005$ К и $J/k_B = 17.7 \pm 0.3$ К, т.е. $k_B T_c/J = 0.177 \pm 0.003$ (относительная ошибка составляет 1.7%). Тогда из уравнения (26) находим, что $|J'|/J = (1.1-1.4) \cdot 10^{-3}$. Относительная ошибка для параметра $|J'|/J$, таким образом, составляет 12%. Столь сильное увеличение погрешности обусловлено быстрым нарастанием крутизны кривой 1 при уменьшении величины J'/J (см. рис. 5).

Другая возможность определения отношения

$|J'|/J$ в суперантиферромагнитной системе состоит в использовании значения восприимчивости в максимуме (см. рис. 5, кривая 2). Как было установлено в предыдущем разделе, $J\chi_{\parallel}^{(max)}/N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2$ и $|J'|/J$ связаны обратной пропорциональной зависимостью (25). При такой связи относительные ошибки аргумента и функции, очевидно, равны друг другу и поэтому

$$\delta\left(\frac{|J'|}{J}\right) = \delta(\chi_{\parallel}^{(max)}) + \delta\left(\frac{J}{k_B}\right) + \delta(C_{\parallel}). \quad (31)$$

Важное преимущество этого метода оценки $|J'|/J$ по сравнению с предыдущим способом заключается в том, что тут ошибка не зависит от степени анизотропности решетки.

Теперь мы можем представить основной результат раздела — количественное описание хода магнитной восприимчивости FeTAC во всей температурной области: как выше, так и ниже температуры максимума — вплоть до абсолютного нуля. Для описания мы брали 10-цепочечный полосковый кластер, что гарантирует уровень погрешности приближения существенно ниже экспериментальных ошибок. (При необходимости можно использовать полоски $L \times \infty$ с ширинами $L = 12, 14$ и даже более; вычислительная техника позволяет сейчас это делать.)

В формулу для продольной восприимчивости (5) входят три параметра: J/k_B , g_{\parallel} и J'/J . Первые два, J/k_B и g_{\parallel} , мы брали, следуя авторам работы [7], из подгонки зависимости $\chi_{\parallel}^{(1D)}(T)$ к опытным точкам при температурах шесть и более кельвинов: $J/k_B = 16.6$ К и $g_{\parallel} = 7.67$. Третий параметр, J'/J , был определен нами из наилучшей подгонки к максимуму восприимчивости ($T_{max} = 3.18$ К, $\chi_{\parallel}^{(max)} = 100$ см³/моль) [7]. Подгонка дала $J'/J = -0.00138$ с ошибкой в последнем знаке.

На рис. 6 воспроизведены экспериментальные точки из работы [7] для FeTAC и наша теоретическая кривая с приведенными выше значениями параметров. График на этом рисунке показывает, что развитая теория адекватно отражает эксперимент. Подчеркнем еще раз, что до этого авторы работы [7] оказались в состоянии теоретически описать данные для восприимчивости лишь только выше температуры максимума — в области применимости одноцепочечного приближения.

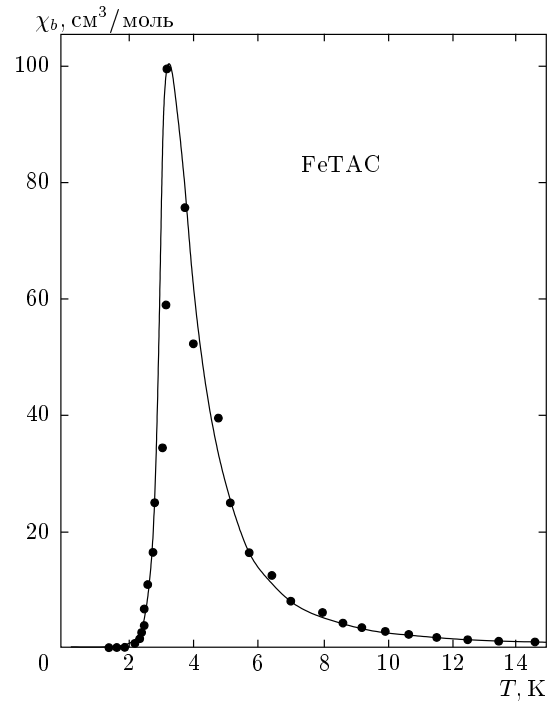


Рис. 6. Магнитная восприимчивость FeTAC вдоль кристаллографической оси b . Кружки — измерения [7]. Сплошная кривая — зависимость $\chi_{\parallel}^{(10 \times \infty)}(T)$ с $J/k_B = 16.6$ К, $g_{\parallel} = 7.67$ и $J'/J = -1.38 \cdot 10^{-3}$

5. КЛАСТЕРНЫЕ РАЗЛОЖЕНИЯ В ТРЕХ ИЗМЕРЕНИЯХ

В настоящее время технические возможности компьютеров позволяют рассчитывать интересные нас цепочечные кластеры Изинга в трех измерениях лишь для $L \leq 4$. При этом для двухцепочечного кластера и для призмы $2 \times 2 \times \infty$ выражения для восприимчивостей можем брать в точном аналитическом виде (см. Приложение).

Для решения проблемы собственных значений трансфер-матрицы $65\,536 \times 65\,536$ изинговского параллелепипеда $4 \times 4 \times \infty$, который имеет периодические граничные условия в двух поперечных направлениях, мы сначала использовали решеточную и спиновую симметрии модели. Это позволило привести исходную крупномасштабную трансфер-матрицу к блочно-диагональному виду с размерами двух субблоков, собственные значения и собственные векторы которых необходимы для расчета восприимчивости по формуле (5), всего только 433×433 и 372×372 [34]. Окончательная точная численная диагонализация таких небольших мат-

риц-субблоков уже не вызывает трудностей, и ее выполнение может быть проведено на обычном персональном компьютере.

Следующим подходящим для нас кластером является $6 \times 6 \times \infty$. Однако трансфер-матрица для него имеет гигантские размеры: $2^{36} \times 2^{36}$ (примерно 68 миллиардов \times на 68 миллиардов). Даже если учесть (по аналогии с $4 \times 4 \times \infty$) все явные симметрии подсистемы, порядки двух требуемых субблоков будут составлять 119583470 и 119539680 [34]. К сожалению, решение полной проблемы собственных значений и собственных векторов для полностью заполненных матриц таких порядков выходит далеко за пределы возможностей существующих суперкомпьютеров. Достижения для модели Изинга $6 \times 6 \times \infty$ пока что ограничены ее квантовым пределом и нахождением нескольких наименьших собственных значений разреженной матрицы соответствующего гамильтониана [45].

Итак, мы вынуждены ограничиваться кластерами $2 \times \infty$, $2 \times 2 \times \infty$ и $4 \times 4 \times \infty$. На рис. 7 показаны графики начальной восприимчивости, относящиеся к 3D-случаю. Кривые 2, 3 и 4 демонстрируют сходимость кластерных приближений с увеличением числа цепочек в подсистемах. Качественно картина сходна с 2D-вариантом (рис. 3 и 4): при увеличении поперечных размеров кластеров максимум продольной восприимчивости растет, а его температура уменьшается (в приведенных единицах). В пределе $L \rightarrow \infty$ координаты суперантиферромагнитного максимума достигают своих некоторых предельных значений, которые мы теперь, увы, не можем получить путем экстраполяции Шанкса из-за недостаточного числа подсистем: не хватает третьей точки — решения для кластера $6 \times 6 \times \infty$. (К сожалению, $2 \times \infty$ -цепочка еще не сформировалась в полноценный 3D-кластер, и поэтому она не годится в качестве звена в экстраполяции.)

Количественную информацию о точности $4 \times 4 \times \infty$ -приближения, которое мы намерены применить для интерпретации эксперимента, можно извлечь косвенным способом из сравнения с результатами паде-обработки высокотемпературных рядов для продольной восприимчивости анизотропной 3D-решетки Изинга [24]. В указанной работе ([24, табл. 1]) представлены координаты суперантиферромагнитного максимума в зависимости от величины нормированного взаимодействия J'/J . В полностью изотропном случае ($|J'/J| = 1$), когда есть все основания доверять расчетам с использованием высокотемпературных разложений, $k_B T_{max}/J = 2.400(25)$ и

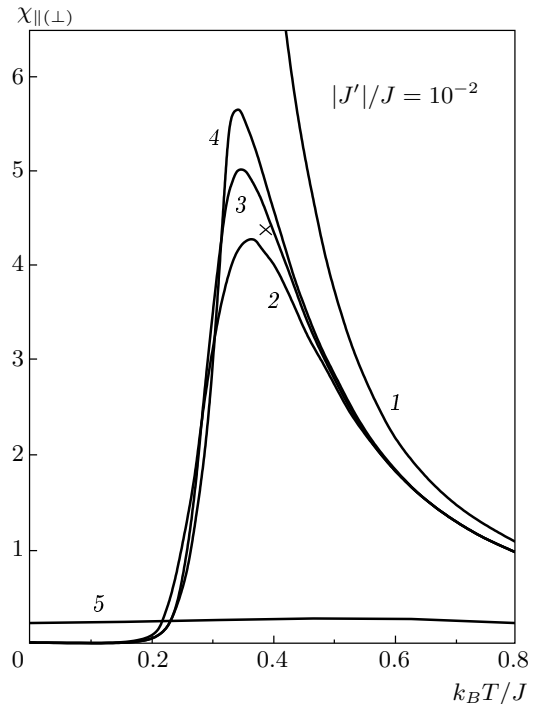


Рис. 7. Продольная восприимчивость $\chi_{||}$ (в единицах $N_A g_{||}^2 \mu_B^2 / J = 1$) кластеров Изинга при $|J'/J| = 10^{-2}$: 1 — линейная ферромагнитная цепочка, 2 — двойная цепочка с учетверенными межцепочечными связями, 3 — циклический брусок $2 \times 2 \times \infty$ и 4 — циклический параллелепипед $4 \times 4 \times \infty$. Крестик — положение максимума по расчетам [24]. Для сравнения показан также ход поперечной восприимчивости χ_{\perp} (в единицах $N_A g_{\perp}^2 \mu_B^2 / J = 1$) линейной цепочки Изинга (кривая 5)

$J \chi_{||}^{(max)} / N_A g_{||}^2 \mu_B^2 = 0.058$ [24]. Для $4 \times 4 \times \infty$ -решетки наш расчет дает $J \chi_{||, max}^{(4 \times 4 \times \infty)} / N_A g_{||}^2 \mu_B^2 = 0.05547$. Следовательно, $4 \times 4 \times \infty$ -приближение занижает высоту максимума на 4.35%. Если принять по аналогии с 2D-случаем, что относительная ошибка для величины максимума не зависит от степени анизотропности решетки (в действительности, такая ошибка даже несколько падает с уменьшением $|J'/J|$, в чем нетрудно убедиться, беря данные из табл. 1, скажем, для $L = 4$), то приходим к заключению, что $4 \times 4 \times \infty$ -аппроксимация обеспечивает ошибку на уровне 4%. Поскольку мы будем применять теоретические расчеты к опытам по порошковой восприимчивости, которые не отличаются высокой точностью, вполне разумно считать, что приближение $4 \times 4 \times \infty$ -кластерами пригодно

Таблица 2. Решетка $4 \times 4 \times \infty$ с $J > 0$ и $J' < 0$. Координаты максимума продольной восприимчивости в нормированных единицах в зависимости от J'/J

| J'/J | $k_B T_{max}/J$ | $\frac{1}{3} \chi_{\parallel, max}^{(4 \times 4 \times \infty)}$ |
|---------|-----------------|--|
| -1.0000 | 2.5833625 | 0.01849229 |
| -0.1000 | 0.7155626 | 0.18871242 |
| -0.0100 | 0.3389309 | 1.89015328 |
| -0.0095 | 0.3346111 | 1.98964522 |
| -0.0090 | 0.3301889 | 2.10018741 |
| -0.0085 | 0.3254978 | 2.22374800 |
| -0.0080 | 0.3207257 | 2.36273906 |
| -0.0075 | 0.3158513 | 2.52025948 |
| -0.0070 | 0.3105331 | 2.70029750 |
| -0.0065 | 0.3052407 | 2.90802557 |
| -0.0060 | 0.2996506 | 3.15038075 |
| -0.0055 | 0.2936108 | 3.43680225 |
| -0.0050 | 0.2875449 | 3.78048335 |
| -0.0045 | 0.2808194 | 4.20055926 |
| -0.0040 | 0.2738453 | 4.72563875 |
| -0.0035 | 0.2661257 | 5.40079611 |
| -0.0030 | 0.2578018 | 6.30088685 |
| -0.0025 | 0.2483499 | 7.56111673 |
| -0.0020 | 0.2378198 | 9.45146198 |
| -0.0015 | 0.2252555 | 12.6019164 |
| -0.0010 | 0.2095811 | 18.9030324 |

для описания таких опытных данных.

Как уже было упомянуто во Введении, с уменьшением $|J'/J|$ высокотемпературные ряды из-за небольшого числа членов в них начинают приводить к увеличению ошибок. На рис. 7 крестиком показано положение максимума восприимчивости при $|J'/J| = 10^{-2}$ по данным работы [24]: $k_B T/J = 0.385(5)$, $J \chi_{\parallel} / N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2 = 4.40(75)$. Из рисунка следует, что при таких анизотропиях высокотемпературные разложения по точности уступают даже $2 \times 2 \times \infty$ -приближению и явно негодны для описания экспериментальных данных сильноанизотропных суперантиферромагнетиков типа $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ ($|J'/J| < 10^{-2}$), хотя в работе [24] такие количественные описания были слепо проведены; как ясно теперь, без всяких на то оснований.

В табл. 2 собраны значения координат макси-

мума суперантиферромагнитной восприимчивости $3D$ -кластера $4 \times 4 \times \infty$. (Имея в виду приложения к порошковой восприимчивости, значения максимума продольной восприимчивости в таблице дополнительно нормированы на три.) Из табл. 2 следует, что, как и в $2D$ -решетке, величина максимума продольной восприимчивости с убыванием $|J'/J|$ растет по закону обратно пропорциональной зависимости:

$$\frac{J \chi_{\parallel, max}^{(4 \times 4 \times \infty)}}{3 N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2} \approx \frac{0.019}{|J'/J|}. \quad (32)$$

Объяснение для такого поведения аналогично $2D$ -случаю. Действительно, в ферромагнитной простой кубической решетке Изинга критическая температура при учете межцепочечных связей в молекулярно-полевом приближении (и точном учете внутрицепочечных взаимодействий) удовлетворяет трансцендентному уравнению [44]

$$k_B T_c = \frac{z'}{2} J' \exp\left(\frac{J}{k_B T_c}\right). \quad (33)$$

В достаточно сильно анизотропной суперантиферромагнитной решетке $T_{max} \approx T_c$, а величина максимума порядка $\chi_{\parallel}^{(1D)}(T_{max})$. Поэтому, учитывая формулу (П.1), опять приходим к закону (28).

Таблица 3 содержит координаты точки перегиба ниже максимума и величину градиента продольной восприимчивости в ней. Видим, что абсцисса точки перегиба дает нижнюю границу для истинной критической температуры (ср. с [34]). Численные данные в табл. 3 свидетельствуют о сильном нарастании градиента $\chi' = \partial \chi / \partial T$ (в нормированных единицах) с уменьшением $|J'/J|$. Данные в этой таблице показывают также, что значения восприимчивости в критической точке, как и в точке максимума, возрастают по гиперболическому закону.

6. ПОРОШКОВАЯ МАГНИТНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ СОЛЕЙ $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ И $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$

Магнитные системы кристаллов дипиридиндихлорид кобальта и железа представляют собой трехмерные решетки Изинга с квазиодномерным характером взаимодействий [1, 2]. В этих веществах ионы Co^{2+} или Fe^{2+} суперобменным взаимодействием через хлор связаны в линейные цепочки, которые в пространстве отделены друг от друга пиридиновыми кольцами, ответственными за слабый межцепочечный обмен. При низких температурах (порядка

Таблица 3. Решетка Изинга $4 \times 4 \times \infty$ с $J > 0$ и $J' < 0$. Положение точки перегиба продольной восприимчивости ниже максимума и значения в ней температурной производной и самой восприимчивости в нормированных единицах в зависимости от J'/J

| J'/J | $k_B T_c/J$ | $\frac{1}{3} \chi'_{\parallel, c} (4 \times 4 \times \infty)$ | $\frac{1}{3} \chi_{\parallel, c} (4 \times 4 \times \infty)$ |
|---------|-------------|---|--|
| -1.0000 | 1.947425 | 0.06298528 | 0.01244998 |
| -0.1000 | 0.621899 | 3.41073780 | 0.13753748 |
| -0.0100 | 0.311571 | 110.197410 | 1.39414706 |
| -0.0095 | 0.307526 | 119.120733 | 1.45608732 |
| -0.0090 | 0.303649 | 127.885372 | 1.53655666 |
| -0.0085 | 0.299877 | 139.597874 | 1.63723231 |
| -0.0080 | 0.296189 | 151.066706 | 1.76240864 |
| -0.0075 | 0.291462 | 166.471661 | 1.85697964 |
| -0.0070 | 0.287312 | 182.003965 | 2.00942967 |
| -0.0065 | 0.281839 | 205.372014 | 2.11081321 |
| -0.0060 | 0.277612 | 227.136261 | 2.33597593 |
| -0.0055 | 0.272541 | 254.505992 | 2.55608624 |
| -0.0050 | 0.267087 | 290.445604 | 2.81257312 |
| -0.0045 | 0.260747 | 336.356921 | 3.06639337 |
| -0.0040 | 0.254937 | 394.237723 | 3.50292699 |
| -0.0035 | 0.248861 | 473.481579 | 4.10957821 |
| -0.0030 | 0.241041 | 591.045463 | 4.72049719 |
| -0.0025 | 0.232527 | 745.165859 | 5.60393984 |
| -0.0020 | 0.222934 | 1017.23093 | 6.95010013 |
| -0.0015 | 0.211715 | 1510.16621 | 9.23674430 |
| -0.0010 | 0.197356 | 2567.00852 | 13.6273345 |

температур фазового перехода) из всех энергетических уровней иона металла, перестроенных полем одноионной анизотропии решетки, заметно заселен лишь крамеров дублет основного состояния, отделенный от следующих уровней большой энергетической щелью. В результате взаимодействия таких магнитоактивных центров могут быть описаны на языке изинговских эффективных спинов $1/2$.

Опытные данные по начальной магнитной восприимчивости для поликристаллических порошков $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ опубликованы в работе [11], а для соединения $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ — в работе [17]. Эти данные воспроизведены на рис. 8.

В кристаллах соединения $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ постоянная Кюри равна $C = 2.82(5) \text{ см}^3/\text{моль}$, темпера-

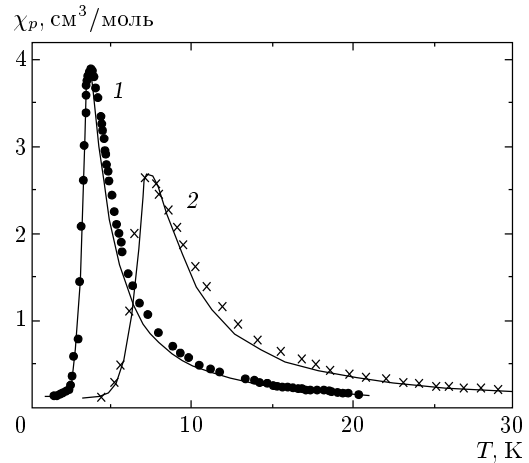


Рис. 8. Температурный ход порошковой восприимчивости $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ (1) и $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ (2). Кружки — измерения [11], крестики — опытные данные [17]. Сплошные кривые — теоретические зависимости (35) с $J/k_B = 11.4 \text{ К}$, $J'/J = -6.53 \cdot 10^{-3}$, $g_{\parallel} = 6.26$, $g_{\perp} = 5.05$ (для $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$) и $J/k_B = 24.5 \text{ К}$, $J'/J = -5.65 \cdot 10^{-3}$, $g_{\parallel} = 7.07$, $g_{\perp} = 6.85$ (для $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$)

тура Кюри-Вейсса $\Theta = 4.95(5) \text{ К}$ и низкотемпературный предел порошковой восприимчивости составляет $\chi_p(0) = 0.14(1) \text{ см}^3/\text{моль}$ [11]. Эти численные значения, как легко убедиться, удовлетворяют ограничению сверху (23). К сожалению, из-за слишком большой погрешности мы не можем извлечь полезную количественную информацию из неравенства (22). Однако, поскольку значения восприимчивости в максимуме велики (см. рис. 8), межцепочечные взаимодействия в системе очень слабы. Это позволяет, во-первых, не учитывать такие взаимодействия в поперечной компоненте восприимчивости (вклад от них значительно меньше ошибки измерения $\chi_p(0)$). Пренебрегая, кроме того, связями J' в выражении для Θ , из расцепленной системы уравнений (19)–(21) находим $J/k_B = 11.4 \text{ К}$, $g_{\parallel} = 6.26$ и $g_{\perp} = 5.05$. Чтобы построить график, нужно определить последний, четвертый, параметр J'/J .

В $3D$ -решетке Изинга поведение критической температуры и максимума восприимчивости в зависимости от $|J'/J|$ качественно повторяют поведение в $2D$ -модели, показанное на рис. 5. Численные значения для $k_B T_c/J$ в $3D$ -случае можно найти в недавней работе ([34], табл. 3, колонка T_c с дополнительным нормированием на два). Используя их и беря для $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ параметры $T_c = 3.17(2) \text{ К}$ и $J/k_B = 10.6(6) \text{ К}$ [11], находим $|J'/J| = 0.0069^{+0.0022}_{-0.0016}$; ошибка порядка

30%. Для $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ имеем $T_c = 6.6(3)$ К и $J/k_B = 25(2)$ К [17], следовательно, $|J'|/J = 0.0038_{-0.0015}^{+0.0033}$. Здесь, таким образом, погрешность оценки $|J'|/J$ по критической температуре еще больше. Поэтому снова будем находить $|J'|/J$ по величине максимума восприимчивости.

На рис. 7 видно, что в районе локализации максимума продольной восприимчивости поперечная компонента фактически постоянна и с учетом (15) и (П.12) равна $[\chi_{\perp}^{(1D)}(0) + \chi_{\perp, \text{max}}^{(1D)}]/2 \approx 0.27496$ (в единицах $J/N_A g_{\perp}^2 \mu_B^2 = 1$). В результате для нахождения величины максимума порошковой восприимчивости квазиодномерного суперантиферромагнетика Изинга в области $10^{-3} \leq |J'|/J \leq 10^{-2}$ пригодна формула

$$\frac{J\chi_p^{(\text{max})}}{N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2} \approx \frac{1}{3} \frac{J\chi_{\parallel, \text{max}}^{(4 \times 4 \times \infty)}}{N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2} + 0.1833 \left(\frac{g_{\perp}}{g_{\parallel}} \right)^2. \quad (34)$$

Значения $J\chi_{\parallel, \text{max}}^{(4 \times 4 \times \infty)}/3N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2$ даны в табл. 2.

Беря для $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ экспериментальное значение $\chi_p^{(\text{max})} = 3.9$ см³/моль, которое мы определили по представленным графическим данным ([11, рис. 4]), и используя $4 \times 4 \times \infty$ -кластерное приближение, находим, что эффективная константа обменных взаимодействий между цепочками (нормированная на константу внутрицепочечных связей) равна $|J'|/J = 6.53 \cdot 10^{-3}$.

График теоретической зависимости порошковой восприимчивости

$$\chi_p(T) \approx \frac{1}{3} \left[\chi_{\parallel}^{(4 \times 4 \times \infty)}(T) + 2\chi_{\perp}^{(1D)}(T) \right] \quad (35)$$

с полученными для $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ параметрами показан на рис. 8 (кривая 1). Положение максимума на нем соответствует 3.48 К, что согласуется с экспериментальным значением $T_{\text{max}} = 3.51(1)$ К [11]. Точка перегиба ниже максимума на теоретической кривой расположена при температуре 3.2 К. Это также находится в удовлетворительном согласии с величиной критической температуры $T_c = 3.17(2)$ К, полученной из измерений теплоемкости [11].

Из обработки опытных данных для $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ [17] мы извлекли $C = 4.5$ см³·К/моль, $\Theta = 8.5$ К, $\chi_p(0) = 0.12$ см³/моль и $\chi_p^{(\text{max})} = 2.7$ см³/моль. Снова проводя подгонку параметров модели, для этого вещества находим $J/k_B = 24.5$ К, $|J'|/J = 5.65 \cdot 10^{-3}$, $g_{\parallel} = 7.07$ и $g_{\perp} = 6.85$. График зависимости (35) с этими параметрами также представлен на рис. 8 (кривая 2). На этой кривой $T_{\text{max}} = 7.2$ К и $T_c = 6.7$ К. По данным же работы [17] $J/k_B = 25(2)$ К и $T_c = 6.6(3)$ К,

т.е. наши оценки для J/k_B и T_c лежат внутри интервалов экспериментальных погрешностей.

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе выполнено исследование температурного поведения продольной и поперечной компонент тензора начальных статических восприимчивостей для двумерной и трехмерной моделей Изинга с пространственно-анизотропными взаимодействиями. Наше исследование основано на аппроксимациях исходной решетки ансамблем независимых цепочечных кластеров, имеющих бесконечную протяженность вдоль направления с наибольшим взаимодействием.

В работе подробно рассмотрен случай ферромагнитных внутрицепочечных и антиферромагнитных межцепочечных взаимодействий. Это соответствует суперантиферромагнитному характеру связей в системе. При таком режиме взаимодействий продольная восприимчивость имеет максимум, величина которого тем больше, чем меньше связи между цепочками. Мы нашли и интерпретировали закон обратной пропорциональной зависимости высоты максимума от величины межцепочечных взаимодействий.

Найдено также, что при фиксированных поперечных размерах кластеров относительная ошибка (из-за конечности L) для величины максимума практически не зависит от степени анизотропии решетки.

Показано, что для сильноанизотропных суперантиферромагнетиков величину межцепочечных взаимодействий существенно точнее можно определять по значению восприимчивости в максимуме, чем по критической температуре; последний способ оправдан для слабоанизотропных систем.

Проведенный анализ сходимости кластерных разложений показал, что в двумерном случае полоски $L \times \infty$ с шириной $L = 10$ для величины максимума обеспечивают точность 0.2%. При необходимости точность вполне реально можно повысить, увеличивая поперечные размеры кластеров. В настоящее время расчеты полосок с ширинами $L \leq 10$ доступны на рядовом персональном компьютере. Вычисления при ширинах примерно до $L = 16$ могут быть осуществлены на суперкомпьютерах. Переход к еще большим размерам полосок возможен, если использовать симметрию цилиндров $L \times \infty$ и приводить трансфер-матрицу к блочно-диагональной форме.

В трех измерениях положение дел кардинально

иное. Восприимчивость подсистем Изинга $L \times L \times \infty$ с $L \leq 4$ мы можем рассчитывать на персональном компьютере. С другой стороны, аналогичная $6 \times 6 \times \infty$ -задача пока не доступна ни для каких суперкомпьютеров даже после квазидиагонализации трансфер-матрицы.

Достигнутые точности приближений позволили нам дать аргументированное количественное описание данных экспериментов по измерению магнитных восприимчивостей реальных двумерных и трехмерных пространственно-анизотропных суперантиферромагнетиков Изинга. Наши расчеты на практике пригодны во всем интервале измеренных температур.

Полученное согласие эксперимента с теорией свидетельствует о том, что кристаллы соединений FeTAC , $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ и $\text{FeCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{H}_5$ действительно можно с высокой степенью точности отнести к разряду изинговских магнетиков.

Точность оценок параметра $|J'|/J$ для всех рассмотренных веществ повышена с одной-двух значащих цифр до трех.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 03-02-16909, 04-03-32528).

ПРИЛОЖЕНИЕ

Приведем аналитические формулы, которые служат инструментом при анализе опытных данных.

Продольная восприимчивость

Начальная продольная восприимчивость $1D$ -цепочки Изинга равна

$$\chi_{\parallel}^{(1D)}(T) = \frac{N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2}{4k_B T} e^{J/k_B T}. \quad (\text{П.1})$$

Для продольной восприимчивости двухцепочечной ($2 \cdot 1D$) модели Изинга имеем [46, 47] (см. также [48])

$$\begin{aligned} \chi_{\parallel}^{(2 \cdot 1D)}(T) &= \frac{N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2}{4k_B T} \frac{e^{J/k_B T}}{A \operatorname{ch}(z'J'/2k_B T)} \times \\ &\times \left(A + \operatorname{ch} \frac{J}{k_B T} \operatorname{sh} \frac{z'J'}{2k_B T} \right) \times \\ &\times \left(A + \operatorname{sh} \frac{J}{k_B T} \operatorname{sh} \frac{z'J'}{2k_B T} \right), \quad (\text{П.2}) \end{aligned}$$

где

$$A = \left(1 + \operatorname{ch}^2 \frac{J}{k_B T} \operatorname{sh}^2 \frac{z'J'}{2k_B T} \right)^{1/2}. \quad (\text{П.3})$$

Выражение для продольной восприимчивости четырехцепочечной ($4 \cdot 1D$) модели Изинга — трубки $4 \times \infty$ или циклического бруска $2 \times 2 \times \infty$ (т. е. первого нетривиального $3D$ -кластера) — имеет вид [30]

$$\begin{aligned} \chi_{\parallel}^{(4 \cdot 1D)}(T) &= \frac{N_A g_{\parallel}^2 \mu_B^2}{16k_B T} \times \\ &\times \frac{(A^2 - 4e^{2y} \operatorname{sh}^4 x)F + 4AGe^y \operatorname{sh} x}{(A^2 - 2Ae^y \operatorname{sh} 2x \operatorname{ch} y + 4e^{2y} \operatorname{sh}^4 x)R_1 R_2}, \quad (\text{П.4}) \end{aligned}$$

где

$$R_{1,2} = \left[1 + \left(\sqrt{2} \operatorname{ch} x \operatorname{sh} y \pm \operatorname{ch} y \right)^2 \right]^{1/2},$$

$$\begin{aligned} A &= \left(\sqrt{2} \operatorname{ch} x \operatorname{ch} y + \operatorname{sh} y + R_1 \right) \times \\ &\times \left(\sqrt{2} \operatorname{ch} x \operatorname{ch} y - \operatorname{sh} y + R_2 \right), \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} B &= 4 \left[1 + \left(\sqrt{2} \operatorname{ch} x \operatorname{sh} y + \operatorname{ch} y + R_1 \right) \times \right. \\ &\left. \times \left(\sqrt{2} \operatorname{ch} x \operatorname{sh} y - \operatorname{ch} y + R_2 \right) \right], \quad (\text{П.5}) \end{aligned}$$

$$F = \operatorname{ch}^2 y - 2 \operatorname{ch}^2 x \operatorname{sh}^2 y + R_1 R_2 + B - 3,$$

$$G = 2\sqrt{2}(R_1 + R_2) + \operatorname{ch} x \operatorname{sh} y(2B - F),$$

причем здесь $x = J/k_B T$ и $y = z'J'/2k_B T$.

Из этих формул следует, что продольная восприимчивость при $T \rightarrow 0$ либо неограниченно возрастает, либо, наоборот, стремится к нулю (по экспоненциальному закону) в зависимости от того, обладает ли при $T = 0$ упорядоченное состояние отличным от нуля магнитным моментом или нет. В частности, если $J > 0$, а $J' < 0$, то при $T = 0$ продольная восприимчивость равна нулю. При $T \rightarrow \infty$ эта восприимчивость при любом соотношении между константами взаимодействия стремится к нулю по закону Кюри–Вейсса (9), причем, что важно, с правильными для полной системы константами — постоянной Кюри (10) и температурой Кюри–Вейсса (11).

Поперечная восприимчивость

Поперечная восприимчивость линейной цепочки Изинга в нулевом внешнем поле имеет вид [36, 49, 50]

$$\begin{aligned} \chi_{\perp}^{(1D)}(T) &= \frac{N_A g_{\perp}^2 \mu_B^2}{4J} \times \\ &\times \left[\operatorname{th} \frac{J}{2k_B T} + \frac{J/2k_B T}{\operatorname{ch}^2(J/2k_B T)} \right]. \quad (\text{П.6}) \end{aligned}$$

Начальная поперечная восприимчивость двойной цепочки Изинга с величиной межцепочечных взаимодействий $z'J'$ есть [51]

$$\chi_{\perp}^{(2,1D)}(T) = \frac{1}{16} N_A g_{\perp}^2 \mu_B^2 (A_1 - B_1 G_1 + 2A_2 G_2 - 2B_2 G_3 + A_3 G_4 - B_3 G_5). \quad (\text{II.7})$$

В этом равенстве

$$A_1 = \frac{1}{2J + z'J'} \operatorname{sh} \frac{2J + z'J'}{k_B T} + \frac{1}{2J - z'J'} \times \\ \times \operatorname{sh} \frac{2J - z'J'}{k_B T} + \frac{2}{z'J'} \operatorname{sh} \frac{z'J'}{k_B T},$$

$$A_2 = \frac{1}{2J + z'J'} \operatorname{sh} \frac{2J + z'J'}{k_B T} - \\ - \frac{1}{2J - z'J'} \operatorname{sh} \frac{2J - z'J'}{k_B T}, \quad (\text{II.8})$$

$$A_3 = \frac{4}{2J + z'J'} \operatorname{sh} \frac{2J + z'J'}{k_B T} - A_1 - 2A_2$$

и далее

$$B_1 = \frac{1}{2J + z'J'} \left(\operatorname{ch} \frac{2J + z'J'}{k_B T} - 1 \right) - \\ - \frac{1}{2J - z'J'} \left(\operatorname{ch} \frac{2J - z'J'}{k_B T} - 1 \right) + \\ + \frac{2}{z'J'} \left(\operatorname{ch} \frac{z'J'}{k_B T} - 1 \right),$$

$$B_2 = \frac{1}{2J + z'J'} \left(\operatorname{ch} \frac{2J + z'J'}{k_B T} - 1 \right) + \\ + \frac{1}{2J - z'J'} \left(\operatorname{ch} \frac{2J - z'J'}{k_B T} - 1 \right), \quad (\text{II.9})$$

$$B_3 = \frac{4}{2J + z'J'} \left(\operatorname{ch} \frac{2J + z'J'}{k_B T} - 1 \right) - B_1 - 2B_2;$$

для остальных величин, входящих в соотношение (II.7), имеем

$$G_1 = \frac{1}{R} \operatorname{ch} \frac{J}{k_B T} \operatorname{sh} \frac{z'J'}{2k_B T},$$

$$G_2 = \frac{1}{R} \operatorname{sh} \frac{J}{k_B T} \operatorname{sh} \frac{z'J'}{2k_B T},$$

$$G_3 = \frac{1}{R} \operatorname{sh} \frac{J}{k_B T} \left(\operatorname{ch} \frac{z'J'}{2k_B T} - \frac{1}{S} \operatorname{ch} \frac{J}{k_B T} \right),$$

$$G_4 = \frac{1}{S} \operatorname{sh}^2 \frac{J}{k_B T} \left(\frac{2}{R} \operatorname{sh}^2 \frac{z'J'}{2k_B T} + \frac{1}{S} \right), \quad (\text{II.10})$$

$$G_5 = \frac{1}{RS} \operatorname{sh}^2 \frac{J}{k_B T} \operatorname{sh} \frac{z'J'}{2k_B T} \times \\ \times \left(2 \operatorname{ch} \frac{z'J'}{2k_B T} - \frac{1}{S} \operatorname{ch} \frac{J}{k_B T} \right),$$

где

$$R = \left(1 + \operatorname{ch}^2 \frac{J}{k_B T} \operatorname{sh}^2 \frac{z'J'}{2k_B T} \right)^{1/2}, \quad (\text{II.11})$$

$$S = R + \operatorname{ch} \frac{J}{k_B T} \operatorname{ch} \frac{z'J'}{2k_B T}.$$

Поперечная восприимчивость симметрична относительно замены как $J \rightarrow -J$, так и $J' \rightarrow -J'$. При температуре абсолютного нуля восприимчивость (II.7) равна (15), т. е. обладает правильным предельным значением для систем произвольной размерности. Как видно на рис. 2, при низких температурах поперечная восприимчивость взаимодействующих частиц сначала имеет практически горизонтальный участок (пьедестал), затем проходит через небольшой максимум, после которого постепенно выходит на закон Кюри полной системы (равенства (13) и (14)).

Координаты максимума поперечной восприимчивости (II.6) равны

$$\frac{k_B T_{max}}{|J|} = 0.418778 \dots, \quad \frac{|J| \chi_{\perp, max}^{(1D)}}{N_A g_{\perp}^2 \mu_B^2} = 0.299919 \dots \quad (\text{II.12})$$

Для двойной цепочки Изинга с $z'J'/J = 0.1$ (кривая 2 на рис. 2) максимум поперечной восприимчивости расположен в точке (0.480876 ..., 0.288263 ...).

ЛИТЕРАТУРА

1. L. J. de Jongh and A. R. Miedema, *Adv. Phys.* **23**, 1 (1974); **50**, 947 (2001).
2. M. Steiner, J. Villain, and C. G. Windsor, *Adv. Phys.* **25**, 87 (1976).
3. A. J. Guttmann and I. G. Enting, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 344 (1996).
4. W. P. Orrick, B. G. Nickel, A. J. Guttmann, and J. H. H. Perk, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4120 (2001); *J. Stat. Phys.* **102**, 795 (2001).
5. B. M. McCoy, E-print archives, cond-mat/0012193.
6. S.-C. Chang and M. Suzuki, *Physica A* **341**, 299 (2004).
7. R. E. Greeney, C. P. Landee, J. H. Zhang, and W. M. Reiff, *Phys. Rev. B* **39**, 12200 (1989).

8. C. P. Landee, R. Kuentzler, and J. J. M. Williams, *J. Appl. Phys.* **67**, 5604 (1990).
9. R. S. Rubins, T. D. Black, and A. Sohn, *Phys. Rev. B* **49**, 15366 (1994).
10. R. S. Rubins, A. Sohn, and T. D. Black, *Phys. Rev. B* **61**, 11259 (2000).
11. K. Takeda, S. Matsukawa, and T. Haseda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **30**, 1330 (1971).
12. S. Foner and R. B. Frankel, *J. Chem. Phys.* **68**, 4781 (1978).
13. L. A. Bosch, G. J. P. M. Lauwers, K. Kopinga et al., *J. Phys. C* **20**, 609 (1987).
14. M. Elmassalami and R. C. Thiel, *Physica B* **168**, 137 (1991).
15. H. T. Wittveen, W. L. C. Rutten, and J. Reedijk, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **37**, 913 (1975).
16. H. J. M. de Groot, R. C. Thiel, and L. J. de Jongh, in *Magnetic Excitations and Fluctuations*, Proc. Int. Workshop, San Miniato, Italy, May 28 – June 1, 1984/Ed. by S. W. Lovesey, U. Balucani, F. Borsa, and V. Tognetti, Springer-Verlag, Berlin (1984), p. 21.
17. H. J. M. de Groot, L. J. de Jongh, R. C. Thiel, and J. Reedijk, *Phys. Rev. B* **30**, 4041 (1984).
18. Y. Tanaka and N. Uryû, *Phys. Rev. B* **21**, 1994 (1980).
19. P. Butera and M. Comi, *Phys. Rev. B* **65**, 144431 (2002).
20. M. Campostrini, A. Pelissetto, P. Rossi, and E. Vicari, *Phys. Rev. E* **65**, 066127 (2002).
21. H. Arisue and T. Fujiwara, *Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.)* **119**, 855 (2003).
22. F. Harbus and H. E. Stenley, *Phys. Rev. B* **7**, 365 (1973).
23. D. Hansel, J. M. Maillard, J. Oitmaa, and M. J. Velgakis, *J. Stat. Phys.* **48**, 69 (1987).
24. R. Navarro and L. J. de Jongh, *Physica B* **94**, 67 (1978).
25. М. Фишер, в сб. *Устойчивость и фазовые переходы*, Мир, Москва (1973), с. 245.
26. M. N. Barber, in *Phase Transitions and Critical Phenomena*, ed. by C. Domb and J. L. Lebowitz, Academic Press, London (1983), Vol. 8, p. 145.
27. V. Privman, in *Finite Size Scaling and Numerical Simulation of Statistical Systems*, ed. by V. Privman, World Scientific, Singapore (1990), p. 1.
28. Р. Кубо, в сб. *Вопросы квантовой теории необратимых процессов. Сборник статей*, ИИЛ, Москва (1961), с. 39.
29. Р. Кубо, Дополнение в сб. *Термодинамика необратимых процессов. Лекции в летней международной школе им. Энрико Ферми*, ИИЛ, Москва (1962), с. 345.
30. М. А. Юрищев, *ФНТ* **9**, 851 (1983); *Sov. J. Low Temp. Phys.* **9**, 442 (1983).
31. М. А. Yurishchev, *Phys. Rev. B* **50**, 13533 (1994).
32. Ф. Р. Гантмахер, *Теория матриц*, Наука, Москва (1988).
33. М. А. Yurishchev, *Phys. Rev. E* **55**, 3915 (1997).
34. М. А. Юрищев, *ЖЭТФ* **125**, 1349 (2004).
35. М. Е. Fisher, *Physica* **26**, 618, 1028 (1960).
36. М. Е. Fisher, *J. Math. Phys.* **4**, 124 (1963).
37. М. Фишер, *Природа критического состояния*, Мир, Москва (1968).
38. J. W. Essam and M. E. Fisher, *J. Chem. Phys.* **38**, 802 (1963).
39. A. J. Guttmann and I. G. Enting, *J. Phys. A* **26**, 807 (1993).
40. M. Thomsen, *Phys. Rev. B* **34**, 4762 (1986).
41. W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and B. P. Flannery, *Numerical Recipes in C: The Art of Scientific Computing*, Cambridge University Press, Cambridge (1992).
42. L. Onsager, *Phys. Rev.* **65**, 117 (1944).
43. R. E. Greeney, C. P. Landee, W. M. Reiff, and J. H. Zhang, *J. Appl. Phys.* **64**, 5938 (1988).
44. J. W. Stout and R. C. Chisholm, *J. Chem. Phys.* **36**, 979 (1962).
45. C. J. Hamer, *J. Phys. A* **33**, 6683 (2000).
46. M. Inoue and M. Kubo, *J. Magn. Res.* **4**, 175 (1971).
47. М. А. Юрищев, *ФНТ* **4**, 646 (1978); *Sov. J. Low Temp. Phys.* **4**, 311 (1978).
48. M. Evangelisti, M. L. Kahn, J. Bartolomé et al., *Phys. Rev. B* **68**, 184405 (2003).
49. S. Katsura, *Phys. Rev.* **127**, 1508 (1962).
50. D. C. Mattis, *The Theory of Magnetism. II. Thermodynamics and Statistical Mechanics*, Springer-Verlag, Berlin (1985), Sec. 3.6.
51. М. А. Юрищев, *ФНТ* **6**, 638 (1980).