

研究简报

薄膜尺寸效应对表面临界行为的影响

邹南之

(中山大学物理系,材料科学研究所)

龚昌德¹⁾

(南京大学物理系)

1988年9月20日收到

本文利用平均场理论讨论了薄膜尺寸效应对表面物理量临界指数及表面标度律的影响,说明表面临界行为亦存在渡越现象。

系统表面会表现出复杂的临界行为。一方面由于在表面附近微观相互作用相对于体内有一些改变,导致表面可能先于体内有序,甚至展现出不同性质的自发有序现象,例如铁磁材料表面形成反铁磁序等等^[1]。另一方面在于表面的几何效应,即表面存在破坏了系统的平移对称性及各向同性,因此局域算子在表面的热力学平均值将不同于体内,如铁磁体表面的局域磁化 m_s 与体内磁化有很大差别。这些改变要求引入表面临界指数描述表面局域临界行为,已经建立了一些表面标度律反映表面临界指数与体临界指数的关系^[1-4]。但是,通常实验或者计算机数值计算都是在有限大小的样品上进行,如薄膜等^[5,6],因此需要研究尺寸效应对表面临界行为的影响。下面我们用平均场方法讨论铁磁系统的情况。

铁磁薄膜的朗道自由能要引入表面修正^[1,7]

$$\mathcal{F} = \int_V \left[\frac{1}{2} (\nabla m)^2 + \frac{A}{2} m^2 + \frac{B}{4} m^4 - Hm \right] dV + \int_S \left[\frac{1}{2\lambda} (m_{1+}^2 + m_{1-}^2) - H_1(m_{1+} + m_{1-}) \right] dS. \quad (1)$$

式中第二个积分为对表面进行; $m_{1\pm}$ 分别为两个表面的局域磁化, H_1 为表面磁场, H 为体内磁场, λ 为插入长度。如果 $\lambda < 0$, 表面磁化强于体内磁化, 系统首先在表面形成铁磁序。 $\lambda > 0$, 则表面磁化弱于体内磁化, 系统铁磁序由体内驱动, 需要引入表面临界指数描述表面临界行为²⁾。这里只讨论 $\lambda > 0$ 的情形。原则上 A, B 应与位置有关, 但实际上只有表面附近相互作用程内才明确依赖于位置, 所以通常把 A, B 看作常数。我们曾经用上面的自由能讨论了系统的相关函数, 发现尺寸对表面的临界行为有很大的影响^[8]。

1. 表面局域磁化临界指数

如果取垂直表面方向为 z 方向, 则由朗道自由能可以得到磁化的方程为

$$Am + Bm^3 - \frac{\partial^2 m}{\partial z^2} = H,$$

1) 中国高等科学技术中心(世界实验室)理论物理分中心。

2) 邹南之, 博士论文, 南京大学(1987)。

$$\begin{aligned} \frac{\partial m}{\partial z} \Big|_{z=\frac{L}{2}} + \frac{m_{1+}}{\lambda} &= H_1, \\ \frac{\partial m}{\partial z} \Big|_{z=\frac{L}{2}} - \frac{m_{1-}}{\lambda} &= H_1. \end{aligned} \quad (2)$$

式中 L 为薄膜的厚度. 对于 $\lambda > 0$, 系统相变点 $T_c(L)$ 小于无限大系统的相变点 T_{c0} . 由方程(2)得到相变点方程^[7]为

$$\tan(L|A|^{1/2}/2) = \lambda/|A|^{1/2}. \quad (3)$$

引入新的约化温度 $t = \frac{T - T_c(L)}{T_{c0}} = t - \frac{T_c(L) - T_{c0}}{T_{c0}} = t - t_c$, 则朗道自由能参数

$$A = \frac{1}{\zeta_0^2} (t + t_c). \quad (4)$$

(1) $H = 0, H_1 = 0$

当外磁场为零, 半无限系统表面自发磁化 $\alpha(-t)^{\beta_1}$, 平均场结果给出 $\beta_1 = 1$. 而对于薄膜系统, 从方程(2)可以得出表面自发磁化要用标度函数描述

$$m_1 = \frac{\zeta_0}{L} M_T \left(\frac{\lambda}{L}, (-t)^{1/2} L / \zeta_0 \right). \quad (5)$$

其渐近行为

$$m_1 = \begin{cases} \frac{\lambda}{\sqrt{B} \zeta_0^2} (-t) & |t| L^2 / \zeta_0^2 \rightarrow \infty, \\ S_T \left(\frac{\lambda}{L} \right) (-t)^{1/2} & |t| L^2 / \zeta_0^2 \rightarrow 0. \end{cases} \quad (6)$$

尺寸效应会改变 m_1 的临界行为. 图 1 为 m_1 的等效临界指数 $\beta_{1\text{等效}} = \frac{\partial \ln m_1}{\partial \ln(-t)}$ 随标度量 $|t| L^2 / \zeta_0^2$ 变化曲线. 当 $|t| L^2 / \zeta_0^2 \gg 1$, 相关长度 $\ll L$, m_1 的临界行为与半无限大系统表面局域磁化相同; 但随着温度趋近于临界点, $|t| L^2 / \zeta_0^2 \leq 1$, 垂直表面方向的大尺度

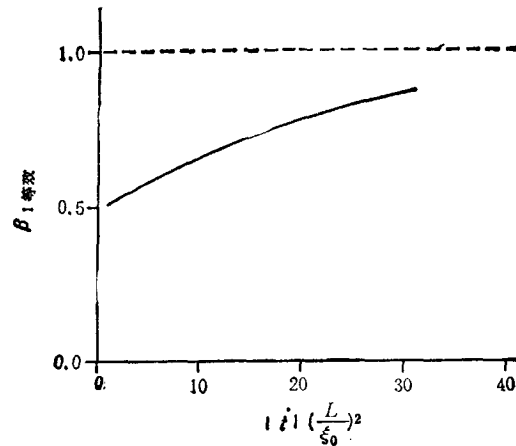


图 1 薄膜表面磁化临界指数 $\beta_{1\text{等效}}$ 随尺寸效应标度量 $|t| \left(\frac{L}{\zeta_0} \right)^2$ 的变化

平均场结果没有维数特征, 其中 $\lambda/L = 0.01$

关联涨落被限制, 系统过渡到 $d-1$ 维均匀系统, $\beta_{1\text{等效}}$ 亦由 1 过渡到体临界指数 $1/2$. 从图 1 中可以看出, 过渡范围在 $|t| \left(\frac{L}{\xi_0}\right)^2$ 为几十以内, 因此用 LEED 等方法测量 β_1 时亦要注意样品尺寸的影响.

(2) $T = T_c, H = 0$

表面磁化 m_1 另一个有趣特征是温度处在相变点时对表面磁场 H_1 的依赖关系, $m_1 \propto H_1^{1/\delta_{11}}$. 对于半无限系统, $\delta_{11} = 1$, 而体临界指数 $\delta = 3$. 当温度在相变点, 并且体内磁场 $H = 0$ 时, 由方程(2)得到薄膜 m_1 的标度形式为

$$m_1 = \frac{\xi_0}{L} M_{H_1} \left(\frac{\lambda}{L}, H_1 \left(\frac{L}{\xi_0} \right)^2 \right). \quad (7)$$

经过运算, 得到渐近行为

$$m_1 = \begin{cases} \lambda H_1 & H_1 L^2 / \xi_0^2 \rightarrow \infty, \\ \left(\frac{\xi_0}{L} \right)^{1/3} S_{H_1} \left(\frac{\lambda}{L} \right) H_1^{1/3} & H_1 L^2 / \xi_0^2 \rightarrow 0. \end{cases} \quad (8)$$

亦存在渡越行为, $H_1^{-1/2}$ 类似于相关长度与 L 标度, 在 $H_1 L^2 / \xi_0^2 \rightarrow 0$ 极限 m_1 的临界值正比于 $\left(\frac{\xi_0}{L}\right)^{1/3}$, 因此是很弱的. 图 2 为 $\delta_{11}^{-1\text{等效}} = \frac{\partial \ln m_1}{\partial \ln H_1}$ 随 $H_1 \left(\frac{L}{\xi_0}\right)^2$ 的变化, 过渡区比较陡.

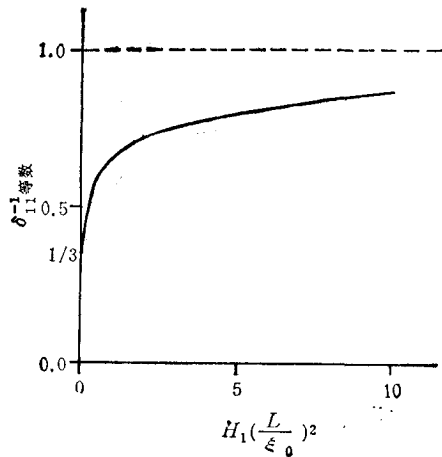


图 2 临界点 m_1 , 临界指数 $\delta_{11\text{等效}}$ 随 $H_1 \left(\frac{L}{\xi_0}\right)^2$ 的变化 其中 $\lambda/L = 0.01$

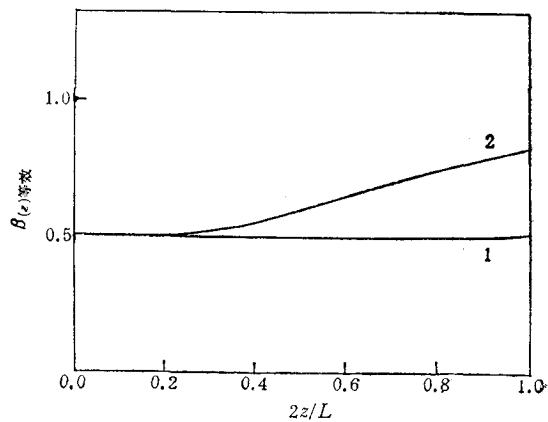


图 3 $\beta_{1\text{等效}} = \frac{\partial \ln m(z)}{\partial \ln t}$ 随 z 的变化
曲线 1 为 $|t| \left(\frac{L}{\xi_0}\right)^2 = 1.78$; 曲线 2 为 $|t| \left(\frac{L}{\xi_0}\right)^2 = 40$

(3) $H_1 = 0, H = 0$ 自发磁化的临界指数

半无限系统表面磁化的临界指数平均场结果 $\beta_1 = 1$, 体内磁化的临界指数平均场结果 $\beta = 1/2$, 而薄膜 m_1 在 $|t| L^2 / \xi_0^2 \rightarrow \infty$ 时, $\beta_1 = 1$, $|t| L^2 / \xi_0^2 \rightarrow 0$ 时, $\beta_1 = 1/2$, 其体内磁化临界指数的变化是令人感兴趣的问题. 由方程(2)得到在外磁场为零时自发磁化

的标度为

$$m(z) = \frac{\zeta_0}{L} M\left(\frac{z}{L}, |z|^{1/2} L / \zeta_0\right). \quad (9)$$

等效临界指数 $\beta_{\text{等效}} = \frac{\partial \ln m(z)}{\partial \ln |z|}$ 将与位置有关. 图 3 为 $\beta_{\text{等效}}$ 随 z 的变化. 薄膜中部的磁化临界指数基本与 $|z| L^2 / \zeta_0^2$ 无关, 但靠近表面部分则出现变化, 随着 $|z| L^2 / \zeta_0^2$ 增大而由 $1/2$ 趋于 1, 因为平均场结果与维数无关, 看不到体内维数渡越现象.

2. 表面磁化率的临界指数

前面讨论了 $T < T_c$ 时表面磁化的尺寸效应. 当 $T > T_c$, 不存在自发磁化, 但磁化率仍有奇异性. 可以定义两种表面磁化率为

$$\chi_1 = \frac{\partial m_1}{\partial H} \Big|_{H_1=0}, \quad \chi_{11} = \frac{\partial m_1}{\partial H_1} \Big|_{H_1=0}. \quad (10)$$

χ_1 为表面层磁化率, 临界指数为 γ_1 ; χ_{11} 为局域磁化率, 临界指数为 γ_{11} . 对方程 (2), $T > T_c$ 时, 可以忽略三次项, 由此可以得到

当 $T > T_{c0}$

$$\chi_1 = \frac{\lambda \tanh\left(\frac{L A^{1/2}}{2}\right)}{A^{1/2} \left\{1 + \lambda A^{1/2} \tanh\left(\frac{L A^{1/2}}{2}\right)\right\}}, \quad \chi_{11} = \frac{\lambda}{1 + \lambda A^{1/2} \tanh\left(\frac{L A^{1/2}}{2}\right)}. \quad (11)$$

当 $T_{c0} > T > T_c$

$$\chi_1 = \frac{\lambda \tan\left(\frac{L |A|^{1/2}}{2}\right)}{|A|^{1/2} \left\{1 - \lambda |A|^{1/2} \tan\left(\frac{L |A|^{1/2}}{2}\right)\right\}}, \quad \chi_{11} = \frac{\lambda}{1 - \lambda |A|^{1/2} \tan\left(\frac{L |A|^{1/2}}{2}\right)}. \quad (12)$$

不难得到渐近行为

$$\chi_1 \propto \begin{cases} z^{-1/2} & |z| L^2 / \zeta_0^2 \rightarrow \infty \\ z^{-1} & |z| L^2 / \zeta_0^2 \rightarrow 0 \end{cases}, \quad (13)$$

$$\chi_{11} \propto \begin{cases} \text{常数} + \text{常数} \times z^{1/2} & |z| L^2 / \zeta_0^2 \rightarrow \infty \\ z^{-1} & |z| L^2 / \zeta_0^2 \rightarrow 0. \end{cases} \quad (14)$$

$|z| L^2 / \zeta_0^2 \rightarrow \infty$, $\gamma_1 = 1/2$, $\gamma_{11} = -1/2$, 这是半无限系统平均场方法给出的结果. 而当 $|z| L^2 / \zeta_0^2 \rightarrow 0$, $\gamma_1 = \gamma_{11} = 1$, 这是体临界指数, 说明表面磁化率同样存在渡越现象. 图

4 为 $\gamma_{1\text{等效}}$ 及 $\gamma_{11\text{等效}}$ 随 $|z| L^2 / \zeta_0^2$ 的变化. $\gamma_{1\text{等效}} = -\frac{\partial \ln \chi_1}{\partial \ln z}$, 由于 χ_{11} 存在尖点, 所以定义

$\gamma_{1\text{等效}}$ 为

$$\gamma_{11\text{等效}} = -\frac{\partial \ln \frac{d\chi_{11}}{dT}}{\partial \ln z} - 1.$$

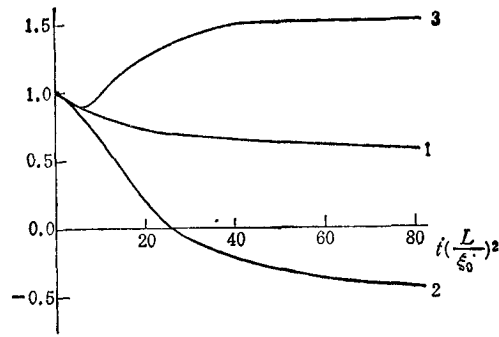


图 4

曲线 1 为 γ_i 等效 随 $|t|(L/\xi_0)^2$ 的变化; 曲线 2 为 γ_{ii} 等效 随 $|t|(L/\xi_0)^2$ 的变化; 曲线 3 为 $2\gamma_i$ 等效 - γ_{ii} 等效 随 $|t|(L/\xi_0)^2$ 的变化. 在平均场的范围内给出了表面标度律成立区域

渡越区域为 $|t|(L/\xi_0)^2$ 从几十至一百开始. 总的来说, 尺寸效应导致表面的临界行为不能简单地用一个临界指数表示, 而应该用一个渡越函数描述. 这些渡越函数的等效临界指数显然不能满足一个确定的标度律, 因此表面标度律的成立范围受到尺寸效应的影响. 如以一个与 γ_i, γ_{ii} 有关的表面标度律为例: $2\gamma_i - \gamma_{ii} = \gamma_b + \nu_b$, 在平均场理论中 $\gamma_b = 1, \nu_b = 1/2$, 图 4 给出了 $2\gamma_i$ 等效 - γ_{ii} 等效 随 $|t|(L/\xi_0)^2$ 的变化, 从曲线可以看出, 只有当 $|t|(L/\xi_0)^2 > 30$ 时, 这个表面标度律才成立. 当 $|t|(L/\xi_0)^2 \rightarrow 0, \gamma_i$ 等效 $\rightarrow 1, \gamma_{ii}$ 等效 $\rightarrow 1$, 这个表面标度律失效. 所以用实验或一些数值方法 (如级数展开等) 检验表面标度律时, 必须注意到渡越现象.

- [1] K. Binder and P. C. Hohenberg, *Phys. Rev.*, **B17** (1972), 318. *Phys. Rev.*, **B9** (1974), 2194.
- [2] A. J. Bray and M. A. Moore, *J. Phys. A*, **10**(1977), 1927.
- [3] M. N. Barber, *Phys. Rev.*, **B8**(1973), 408.
- [4] T. C. Lubensky and M. H. Rubin, *Phys. Rev. B* **12**, 3885 (1975).
- [5] T. W. Copehart and M. E. Fisher, *Phys. Rev.*, **B13**(1976), 5021.
- [6] D. Brewer, *J. Low Temp. Phys.*, **3**(1970), 205.
- [7] D. R. Tilley, *Solid State Commun.*, **49**(1984), 823.
- [8] Zou Nanzhi Gong Changde and A. Holz, *Solid State Commun.*, **59**(1985), 473.

INFLUENCE OF SIZE EFFECT ON CRITICAL BEHAVIORS AT FILM SURFACE

ZOU NAN-ZHI

(Department of Physics, Institute of Material Science, Zhongshan University, Guangzhou)

GONG CHANG-DE

(Department of Physics, Nanjing University)

ABSTRACT

By using mean field theory, we discuss the influence of size effect on surface exponents and scaling laws of a film. We indicate that a crossover phenomenon would appear.