

磁性薄膜热动力学性质的变分累积展开研究*

陈 洪[†] 阎玉立 梅 花

(西南师范大学物理系, 重庆 400715)

(2002 年 12 月 26 日收到, 2003 年 3 月 5 日收到修改稿)

采用变分累积展开方法, 研究了立方格点上磁性薄膜的热动力学性质. 计算自发磁化强度、内能和热容到了三级累积展开, 并对每一级给出了这些物理量对薄膜原子层数的依赖关系. 虽然变分累积展开的收敛性还没有严格证明, 但计算结果显示这些物理量的变分累积展开收敛很快. 三级计算结果足以表明: 对低于某一临界厚度的薄膜, 自发磁化强度随原子层数的减少而减小; 不论在临界温度以下, 还是在临界温度以上, 每单位格点的内能都随原子层数的减少而增大, 每单位格点的热容在临界温度以下随原子层数的减少而增大, 但在临界温度以上随原子层数的减少而减小.

关键词: 磁性薄膜, 热动力学性质, 变分累积展开

PACC: 7510J, 7570

1. 引 言

近年来, 磁性金属薄膜因其在超高密度磁记录介质、磁光记录介质、薄膜磁头及传感器等方面逐渐显示出的应用前景, 而越来越吸引着人们的研究兴趣. 当膜厚足够薄时, 薄膜趋于二维系统, 且表面效应逐渐显示其影响, 从而可以具有与大块材料不同的性能, 其中包含了丰富的物理问题. 实验上, 已相当普遍地发现^[1], 磁层厚度减到纳米量级时多层膜磁化强度与温度的关系逐渐过渡到线性, 而临界温度随薄膜厚度的增加而增大, 并趋于块体材料的值. 理论上, 通常采用平均场理论(MFT)或改进的平均场理论^[2-4], 使用合理的自旋统计模型来研究磁性金属薄膜的性质. 不幸的是, 对平均场理论的高次修正极难处理. 所以, 值得探索允许系统地处理高次修正的其他解析途径.

变分累积展开(VCE)方法在格点规范场模型研究中一直被证明是非常有效的方法^[5], 也一直应用于经典统计模型^[6]和量子统计模型^[7]的性质的研究, 但这些工作仅探讨了块体材料的临界点及相变性质. 最近, 我们用此方法研究了量子 Heisenberg 薄膜的临界点^[8], 发现磁性薄膜的临界约化温度是薄

膜原子层数的函数, 且临界约化温度的三级近似给出了与蒙特卡罗模拟符合相当好的结果. 也有人在变分累积展开的一级近似下探讨了 Ising 薄膜的磁化强度^[9], 但一级近似实质上等同于平均场理论. 有待于研究高次累积展开对磁性薄膜的自发磁化强度 M_s 的修正, 也有待于研究磁性薄膜的内能 U 和热容 C 等随磁性薄膜厚度而变化.

本文把 VCE 方法扩展到研究立方格点上磁性自旋 1/2 Heisenberg 薄膜的自发磁化强度 M_s 、内能 U 和热容 C 随磁性金属薄膜原子层数 l 的变化. 当然, 磁性多层膜或磁性与非磁性多层膜因涉及界面等效效应而需要的模型比 Heisenberg 膜要复杂得多, 但对同种金属磁性薄膜的研究可以作为深入研究的基础.

2. 物理量的累积展开

自旋-1/2 的量子 Heisenberg 模型哈密顿量为

$$H = -J \sum_{i,j} S_i \cdot S_j, \quad (1)$$

其中 S_i 是量子自旋算符, J 代表最临近相互作用能, 求和是对一切可能的最近邻求和. 定义系统的作用量为

* 重庆市科学技术委员会应用基础研究基金资助的课题.

[†]E-mail: chen@swnu.edu.cn

$$S = \beta \sum_{i,j} S_i \cdot S_j, \quad \beta = J/k_B T, \quad (2)$$

系统的配分函数 Z 和自由能 W 为

$$Z = e^{-W} = \text{Tr}(e^S). \quad (3)$$

遗憾的是,对哈密顿量(1),上式不能严格地解析计算.为此,引入平均场形式的试探作用量

$$S_0 = \xi \sum_i S_{iz}, \quad (4)$$

这里 ξ 为变分参数.与 S_0 相应的配分函数和自由能 W_0 能被确切求出,

$$Z_0 = e^{-W_0} = \text{Tr}(e^{S_0}) = Z_{00}^N, \quad (5)$$

其中 N 是格点的数目, Z_{00} 是与 S_0 相应的单位格点的配分函数

$$Z_{00} = \sinh \xi / \sinh \left(\frac{\xi}{2} \right) = 2 \cosh \left(\frac{\xi}{2} \right). \quad (6)$$

使用试探作用量 S_0 ,可将(2)式重新写为

$$\begin{aligned} Z &= e^{-W} = Z_0 e^{S-S_0} \\ &= Z_0 \left\{ \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{k!} (S-S_0)^k \right\}_c, \end{aligned} \quad (7)$$

这里 \dots_0 和 \dots_c 分别表示对试探作用量 S_0 的平均和累计平均.

利用如下恒等式^[8]

$$\begin{aligned} S^n S_0^m \dots_c &= \xi^m \frac{\partial^m}{\partial \xi^m} \ln S^n \dots_c, \\ S_0^n \dots_0 &= \xi^n \frac{\partial^n}{\partial \xi^n} \ln Z_0, \end{aligned} \quad (8)$$

可从(5)式和(7)式得到自由能的 n 次累积展开表达式为

$$\begin{aligned} W_n &= W_0 - \sum_{k=1}^n \frac{1}{k!} \left\{ S^k \dots_c + \sum_{m=1}^k C_k^m (-\xi)^m \frac{\partial^m}{\partial \xi^m} \right. \\ &\quad \left. \times S^{k-m} \dots_c + (-\xi)^k \frac{\partial^k}{\partial \xi^k} \ln Z_0 \right\}, \end{aligned} \quad (9)$$

利用自由能的 n 次累积展开式(9),可得系统的内能 U 和热容 C 的相应级次计算公式

$$U_n = J \frac{\partial W_n}{\partial \beta}, \quad C_n = -k_B \beta^2 \frac{\partial^2 U_n}{\partial \beta^2}. \quad (10)$$

为使用变分累积展开计算我们感兴趣的其他物理量,首先证明一个恒等式,即

$$Q = Q_0 + \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{k!} Q(S-S_0)^k \dots_c, \quad (11)$$

为证明这个恒等式,考虑生成泛函

$$\mathcal{Z}[\lambda] = \text{tr}(e^{\lambda Q+S}), \quad (12)$$

且

$$\mathcal{Z}[0] = Z, \quad (13)$$

于是

$$\begin{aligned} \frac{1}{\mathcal{Z}[\lambda]} \text{tr}(Q e^{\lambda Q+S}) &= \frac{\partial}{\partial \lambda} \ln \mathcal{Z}[\lambda] \\ &= \frac{\partial}{\partial \lambda} \text{Intr}(e^{\lambda Q+S-S_0} e^{S_0}) \\ &= \frac{\partial}{\partial \lambda} \ln \left(Z_0 e^{\lambda Q+S-S_0} \dots_0 \right) \\ &= \frac{\partial}{\partial \lambda} \ln \left\{ Z_0 \exp \left[\sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{k!} \right. \right. \\ &\quad \left. \left. \times (\lambda Q + S - S_0)^k \dots_c \right] \right\} \\ &= \frac{\partial}{\partial \lambda} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{k!} (\lambda Q + S - S_0)^k \dots_c \\ &= Q_0 + \sum_{k=1}^{\infty} Q(\lambda Q + S - S_0)^k \dots_c. \end{aligned} \quad (14)$$

在方程(14)的两边,令 $\lambda=0$,就得到要求的(11)式.

取 $Q = g\mu_B \sum_i S_{iz}$,式中 g 是朗德 g 因子, μ_B 是玻尔磁子,从(11)式,可得自发磁化强度的 n 次累积展开为

$$\begin{aligned} M_n &= g\mu_B \sum_i S_{iz} \\ &= g\mu_B \left\{ \sum_i S_{iz} \dots_0 \right. \\ &\quad \left. + \sum_{k=1}^n \frac{1}{k!} \sum_i S_{iz} (S-S_0)^k \dots_c \right\}. \end{aligned} \quad (15)$$

利用关系式(8)和自由能的 n 次累积展开式(9),自发磁化强度的 n 次累积展开可进一步表示为

$$M_n = g\mu_B \frac{\partial}{\partial \xi} (W_n - W_0). \quad (16)$$

从(9)(10)和(16)式可见,要计算系统的内能、热容和自发磁化强度,必须计算 $S^n \dots_c$ 到希望的级次 n .在我们先前的工作^[8]中已经注意到 $S^n \dots_c$ 可表达为

$$S^n \dots_c = N_l \beta^n \sum_i \alpha_{n,i} D_{n,i} \dots_c, \quad (17)$$

其中 N_l 是每一层中格点的数目, $D_{n,i}$ 是任意级次 n 中的第 i 个关联图形,只有关联图形的累积平均才不为零.如果累积平均值相等的图称为是等价的,那么 $\alpha_{n,i}$ 是第 n 次中第 i 个关联图形的等价类的个数.我们已给出了 $\alpha_{n,i}$ 和 $D_{n,i} \dots_0$ 的到三级的明显表达式(见文献[8]的表1),而 $D_{n,i} \dots_c$ 能由 $D_{n,i} \dots_0$ 和低次累积平均 $D_{k,i} \dots_c$ ($k < n$) 求出.

3. 物理量的变分计算

自发磁化强度(16)式、内能和热容(10)式的累积展开式当 $n \rightarrow \infty$ 时是确切的,完全不依赖于参数 ξ .然而,参数的选择将影响展开的收敛速度.很容易想到,应该选择参数 ξ ,以便使累积展开的收敛半径取极小值.实际上,只能计算这些物理量到有限级次 n ,这导致这些物理量依赖于参数 ξ .因此,必须确定这个参数.这儿,采用文献[5]中类似的变分条件来确定参数 ξ .使用标准不等式 $e^{x_0} \geq e^{x_0}$,容易从方程(7)得到自由能的上束缚条件

$$W \leq W_1 = W_0 - S - S_0, \quad (18)$$

即

$$W \leq -N \ln Z_{00} - \beta N_l \left[(d+1)l - 1 \right] \left(\frac{\partial}{\partial \xi} \ln Z_{00} \right)^2 + N \xi \frac{\partial}{\partial \xi} \ln Z_{00}, \quad (19)$$

式中 N 是薄膜总的格点数目,而 N_l 是薄膜每一层的格点数目,二者的关系为 $N = N_l \times l$.这样,变分参数 ξ 可由下列变分条件确定:

$$\frac{\delta W_1}{\delta \xi} = 0, \quad (20)$$

并得到

$$\begin{aligned} \xi &= 2 \left(d + 1 - \frac{1}{l} \right) \beta \frac{\partial}{\partial \xi} \ln Z_{00} \\ &= \frac{2}{\theta} \left(d + 1 - \frac{1}{l} \right) \frac{\partial}{\partial \xi} \ln Z_{00}, \end{aligned} \quad (21)$$

其中 $\theta = 1/\beta = k_B T/J$ 为约化温度.解依赖于维数 d 、约化温度 θ 、层数 l 和自旋量子数 s .对我们感兴趣的 $d=2, s=1/2$ 情况,图1显示了不同层数时的 ξ 与约化温度 θ 的关系.

从图1可见,对给定的薄膜层数 l ,存在一个临界约化温度 $\theta_c(l)$,当 $\theta(l) > \theta_c(l)$,只有一支解 $\xi_0 = 0$,并相应于自由能 W_1 的极小,而当 $\theta(l) < \theta_c(l)$ 时,有三支解,其中 $\xi_0 = 0$ 相应于 W_1 的极大, ξ_{\pm} 相应于 W_1 的极小.正如先前注意到的那样^[7], $\xi = 0$ 是 W_1 的拐点,而 $\theta_c(l)$ 正是变分累积展开法确定的一级近似临界约化温度,与平均场理论给出的结果完全一致.这与所选平均场形式的试探作用量有关.若选取更为合适的试探作用量,以便包括更多自旋之间的关联,那么有可能在一级近似就给出更好的临界约化温度.另外,也还可考虑用更好的办法来确定变分参数,有人曾试图用更高阶的自由能来确定参

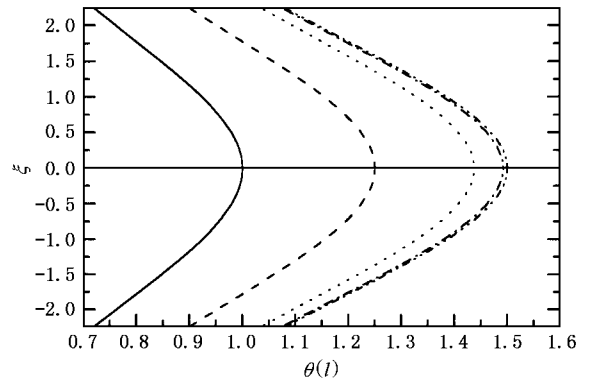


图1 变分参数 ξ 对约化温度 θ 的依赖关系(实、虚、点、虚+点、虚+点点分别为 $l=1, 2, 2.8, 6.4, \infty$ 时的情形)

数,但这是不严格的,因为在这种情况下没有类似于(18)式那样的上束缚条件.计算实际物理量也表明,使用二、三级自由能的极值点给出的变分参数在低于临界温度的区域没有正确的行为,甚至在温度趋于零时导致发散.图2为变分法确定的临界约化温度 $\theta_c(l)$ 随薄膜原子层数 l 的变化,可见临界温度随原子层数的增加而增大,与实验上^[11]观察到 Ni/Ag 双层薄膜中 Ag 层厚度(2 nm)固定,而临界温度随 Ni 厚度增大而增大一致.

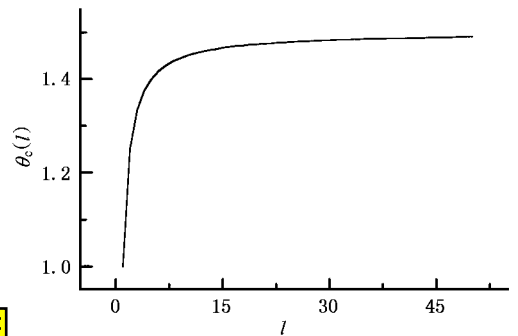


图2 薄膜的临界约化温度 $\theta_c(l)$ 对薄膜原子层数 l 的依赖关系

把解方程(21)而得到的变分参数代入(10)和(16)式,可得自发磁化强度、内能和热容.对 $d=2, s=1/2$ 的情形,图3给出了自发磁化强度的一至三级的计算结果,其中 $M_0 = Ng\mu_B/2$.

从图3(a)、(b)和(c)可见,自发磁化强度是逐级收敛的,因为二级近似对一级近似的修正是明显的,而三级近似只稍许修正了二级近似结果,可预期再往下的修正几乎可以忽略.这也表明三级近似已给出了比较可靠的结果.不论在那级近似下,自发磁化强度都随约化温度 $\theta(l)$ 的增大而减小,临界约化

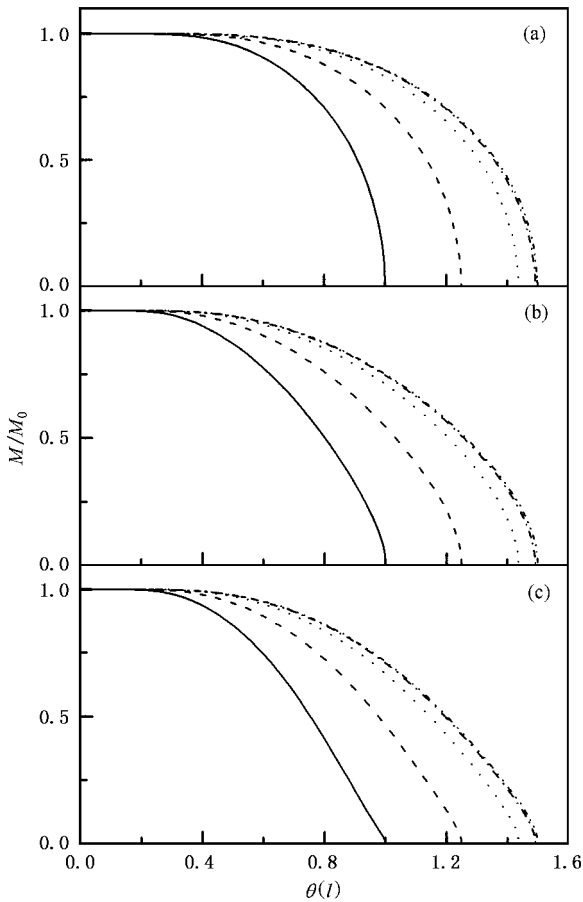


图3 多层膜的自发磁化曲线 (a)(b)和(c)分别是变分累积展开的一级(平均场)、二级和三级近似结果(实、虚、点、虚+点、虚+点点分别是 $l=1, 2, 8, 64, \infty$ 时的情况)

温度 $\theta_c(l)$ 时, 自发磁化强度减小至零. 更重要的

是从图 3(c) 可见, 在 $\theta(l) < \theta_c(l)$ 区域, 在任意给定约化温度, 自发磁化强度依赖于原子层数 l , 在某一临界厚度以下, 自发磁化强度随原子层数 l 的减小而迅速减小. 从图 3(c) 还可发现, 对充分厚的薄膜(块材), 自发磁化强度与温度的关系遵从 $T^{3/2}$ 律, 而对充分薄的薄膜(单原子层), 自发磁化强度在接近临界温度区域与温度 T 成线性关系, 这与实验上已发现磁层厚度减到纳米量级时多层膜的磁化强度与温度的关系逐渐过渡到线性^[1]相一致. 我们的一级近似结果与 Ising 模型一级结果^[9]相一致, 这是因为在变分累积展开的一级近似下自旋算符平行于膜面方向的分量没有贡献, 海森堡模型过渡到 Ising 模型所致. 与有效场理论计算结果^[10, 11]比较, 我们在三级近似下给出的磁化强度随原子层数减少和温度的增加下降得更快, 这更符合实验预示的结果^[1].

对内能和热容的计算, 也显示变分累积展开是迅速收敛的, 其三级近似结果分别在图 4(a)和(b)中给出.

从图 4(a)和(b)可见, 每单位格点的内能和热容在临界约化温度处不连续, 在低于临界约化温度的区域, 在给定温度, 每单位格点的内能和热容都随薄膜原子层数的减少而增大, 而在高于临界约化温度的区域, 在给定温度, 内能随薄膜原子层数的减少而增大, 但热容随薄膜原子层数的减少而减小. 磁性薄膜热动力学性质的这种维度或有限厚度效应有待进一步的实验证实.

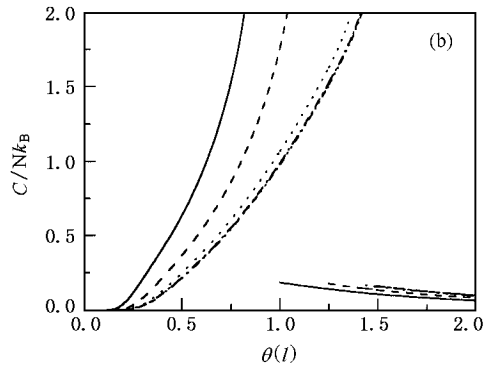
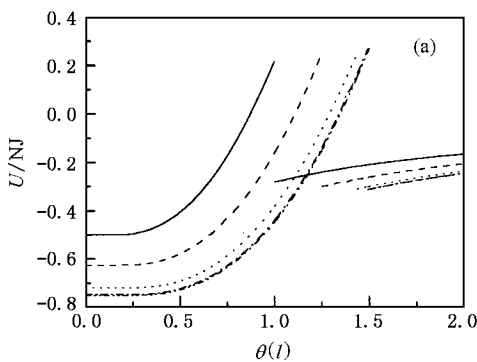


图4 内能 U/NJ (a) 和热容 C/Nk_B (b) 随约化温度 θ 的变化关系(实、虚、点、虚+点、虚+点点分别是 $l=1, 2, 8, 64, \infty$ 时的情况)

- [1] Peng C B *et al* 1992 *J. Appl. Phys.* **71** 5157
- [2] Mathon J 1981 *Phys. Rev. B* **24** 6588
- [3] Sarmento E F, Cressoni J C and dos Santos R J V 1994 *J. Appl. Phys.* **75** 5580
- [4] Dong Z H and Feng S P 1998 *Chin. Phys.* **7** 348
- [5] Zheng X T, Tan Z G and Wang J 1987 *Nucl. Phys. B* **287** 171
- [6] Lin D L, Che H, Lai W *et al* 1994 *Phys. Rev. E* **49** 2155
- [7] Liu R J and Chen T L 1994 *Phys. Lett. A* **194** 137
- [8] Chen H and Zheng R L 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 293 (in Chinese)
[陈 洪、郑瑞伦 2000 物理学报 **49** 293]
- [9] Zhou Y S, Chen J C and Lin D L 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2478 (in Chinese)
[周云松、陈金昌、林多梁 2000 物理学报 **49** 2477]
- [10] Balcerzak T and Kaneyoshi T 1994 *Physica A* **206** 176
- [11] Kaneyoshi T and Jascur M 1993 *Physica A* **195** 474

Thermodynamic properties of ferromagnetic films in variational cumulant expansion *

Chen Hong Yan Yu-Li Mei Hua

(Department of Physics , Southwest China Normal University , Chongqing 400715 , China)

(Received 26 December 2002 ; revised manuscript received 5 March 2003)

Abstract

The thermodynamical properties of quantum Heisenberg films are studied in variational cumulant expansion. The spontaneous magnetization, internal energy and specific heat are calculated to the third order. For a thicknesses below a critical value, the magnetization decreases rapidly as the number of atomic layers is decreased. The internal energy increases with decreasing number of atomic layers at any given temperature, and the specific heat increases below the critical temperature and decreases beyond the critical temperature with decreasing number of atomic layers.

Keywords : magnetic film, thermodynamical property, variational cumulant expansion

PACC : 7510J, 7570

* Project supported by the Foundation of the Chongqing Commission of Science and Technology, China.