

بررسی لایه‌های فروالکتريک به وسیله مدل آیزینگ در يك ميدان عرضي

صابر فرجامي شايسته و محمدعلي سلیماني: دانشگاه گیلان

چکیده

فیلم‌های فروالکتريک را با استفاده از مدل آیزینگ در يك ميدان عرضي، تحت تقریب میدان متوسط مورد بحث و بررسی قرار داده‌ایم. فیلم N لایه‌ای با تقارن مکعبی ساده و برهم‌کنش نزدیکترین همسایه را در نظر می‌گیریم، و چنان فرض می‌کنیم که قدرت تبادل شبه اسپین‌ها و میدان عرضي لایه‌های سطحي نسبت به لایه‌های کپه‌ای متفاوت باشد. ما با این مدل روابط واضحی برای دیاگرام‌های فاز، نیمرخ پارامتر نظم به دست می‌آوریم. در چنین فیلم‌هایی دمای کوري فیلم نسبت به دمای کوري کپه می‌تواند به هر مقدار بالاتر یا پایین‌تر منتقل شود. اگر قدرت تبدلي شبه اسپین‌های سطحي به اندازه کافی بزرگ باشد، حتي وقتی مقدار میدان عرضي بزرگتر از حالت بحراني شود، هنوز گذار فاز به حالت فروالکتريک وجود دارد. در فیلم‌هایی با قطبش سطحي افزایش یافته و $N_s \geq 2$ ماکزیمم پارامتر نظم در لایه‌های مجاور بیرونی‌ترین لایه سطحي رخ می‌دهد.

مقدمه

اثرات اندازه و سطح روی گذار فاز فیلم‌های نازک فروالکتريک مدتهاست که مورد بررسی واقع شده است، اما به دلیل تنوع مواد فروالکتريک و دشواری آماده سازی نمونه‌های نازک بلور با کیفیت بالا، تهیه گزارش‌های جامع و مفید سخت است. فروالکتريک‌های نوع پتاسیم دي هیدروژن فسفات (KDP) موضوع مطالعه ماست. این نوع فروالکتريک‌ها را می‌توان به وسیله يك مدل شبه اسپینی به نام مدل آیزینگ در يك ميدان عرضي (TIM) بررسی کرد. اثرات سطوح روی دمای کوري و طیف برانگیخته موج شبه اسپین به وسیله «بلینک وزکس در ۱۹۷۴» [۱] و «کتام و همکاران در ۱۹۸۴» [۲] جستجو شده است و در اغلب این بحثها از سیستم نیمه متناهي استفاده کرده‌اند. تغییر شکل سطح، قدرت تبدلي سطح را نشان می‌دهد؛ اما درکارهای اخیر وابستگی دمای کوري به ضخامت (تعداد لایه های اتمی) يك فیلم نازک به خوبی با تغییر سطح و ثابت تبدلي و میدان عرضي، با استفاده از تئوري میدان متوسط [۳] و تئوري اثر میدان [۴] بررسی شده است. به عنوان مثال، خواص مغناطیسي فیلم‌های TIM روی يك شبکه مکعبی مرکز حجمی (BCC) به وسیله تئوري اثر میدان در

واژه های کلیدی : مدل آیزینگ، تقریب میدان متوسط، دیاگرام فاز و پارامتر نظم، دمای کوري، قدرت تبدلي، میدان عرضي.

۱۹۹۲ توسط ونگ تحقیق شده است [۵]. در این کارها فرض شده است که پارامترهای مدل (قدرت تبادلي و میدان عرضي)، تنها در خارجي‌ترین لایه‌های سطحی با مقادیر کپه‌ای تفاوت دارند. در اینجا بحث اصلي بررسی اثر تغییرات دمای کوري روی گذار فاز و نیمرخهای قطبش يك فيلم نازك فروالکتريک است.

۱- مباني تنوري و هاميلتوني مدل آيزینگ

يك فيلم فروالکتريک با شبه اسپين‌هایی را که روی شبکه‌ای مکعبی و ساده قرار گرفته و از N لایه اتمي در جهت محور Z تشکیل شده است در نظر می‌گیریم. سیستم را می‌توان به وسیله هاميلتوني آيزینگ در يك میدان عرضي، به شکل زیر توصیف کرد [۱]:

$$H = -\sum_i \Omega_i S_i^x - \frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} S_i^z S_j^z \quad (1)$$

در اینجا S_i^x و S_i^z مولفه‌های عملگر اسپين $\frac{1}{2}$ در جایگاه i ام هستند که قطبش موضعي P_i با متوسط گرمایی S_i^z متناسب است و Ω_i میدان عرضي است که برای فروالکتريک‌هایی که دارای پیوند هیدروژني هستند، توانایی يك پروتون به تونل زني از وضعیتی به وضعیت دیگر را نشان می‌دهد، و J_{ij} توانایی تبادل بین شبه اسپين‌های مکانهای i ام و j ام است که i و j روی همه نقاط شبکه اعتبار دارند. فرض می‌کنیم Ω_i برای لایه‌های اتمي سطحی Ω_s و در سایر جاها Ω باشد و قدرت برهمکنش نزدیکترین همسایه برای هر دو شبه اسپين در لایه‌های سطحی J_s و در سایر جاها J باشد.

در شکل (۱) نمودار طرحوار قدرت تبادلي و میدان عرضي فیلم‌های با يك لایه سطحی (الف) و دو لایه سطحی (ب) نشان داده شده است، N_s تعداد لایه‌های سطحی در مرز و N تعداد کل لایه‌های فیلم را نشان می‌دهد.

خواص آماری هاميلتوني رابطه (۱) را با استفاده از تقریب میدان متوسط بررسی می‌کنیم. با مشتق گيري از متوسط حرارتي رابطه (۱) متوسط حرارتي شبه اسپينها $R_i = \langle S_i \rangle$ به صورت رابطه زیر داده می‌شود [۲]:

$$R_i = \langle S_i \rangle = \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_i^z}{|\varepsilon_i|} \tanh\left[\frac{|\varepsilon_i|}{2K_B T}\right] \quad (2)$$

که در اینجا ε_i میدان متوسطي است که روی اسپين i ام عمل می‌کند.

$$|\varepsilon_i| = [\Omega_i^2 + (\sum_j J_{ij} \langle S_j^z \rangle)^2]^{1/2} \quad (3)$$

برای يك فيلم نازك فروالکتريک با دو لایه سطحی متوسط حرارتي اسپين‌ها را از روابط زیر به دست می‌آوریم. برای لایه‌های سطحی داریم:

$$R_1 = \frac{4J_s R_1 + J_s R_2}{2L_1} \cdot \tanh \frac{L_1}{2k_B T} \quad (4)$$

$$R_2 = \frac{4J_s R_2 + J_s R_1 + J R_3}{2L_2} \cdot \tanh \frac{L_2}{2k_B T} \quad (5)$$

و برای لایه‌های توده‌ای

$$R_n = \frac{4J R_n + J R_{n-1} + J R_{n+1}}{2L_n} \cdot \tanh \frac{L_n}{2k_B T} \quad (6)$$

که در روابط فوق داریم.

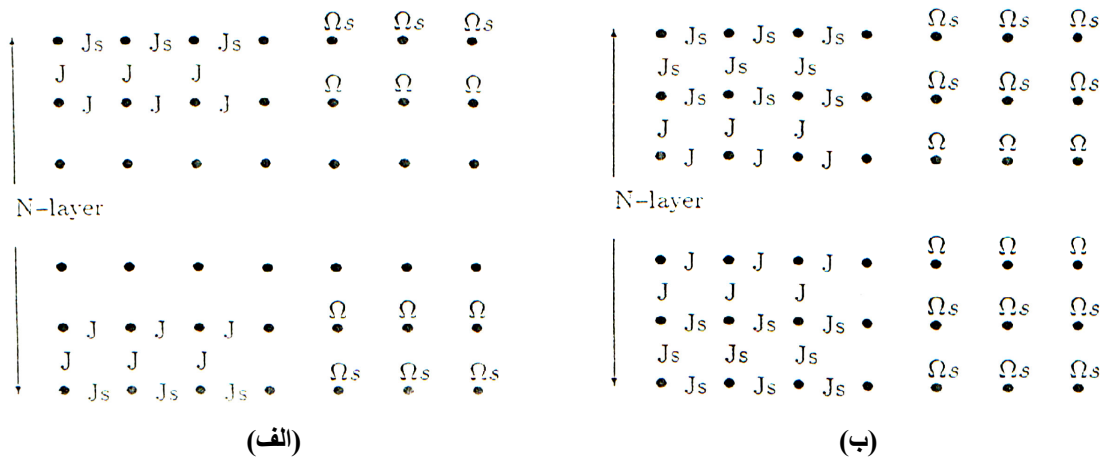
$$L_1 = \sqrt{\Omega_s^2 + (4J_s R_1 + J_s R_2)^2} \quad (7)$$

$$L_2 = \sqrt{\Omega_s^2 + (4J_s R_2 + J_s R_1 + J R_3)^2} \quad (8)$$

$$L_n = \sqrt{\Omega^2 + (4J R_n + J R_{n-1} + J R_{n+1})^2} \quad (9)$$

اغلب محاسبات بعدی برپایه، معادلات فوق، یا مشابه آنها، برای فیلم‌هایی با تعداد لایه‌های سطحی بیشتر از ۲

هستند. لازم به ذکر است که قطبش سطحی متناسب با R_n است.



شکل ۱ نمودار طرحوار قدرت تبادلی و میدان عرضی در (الف) مدل یک لایه سطحی (ب) دو لایه سطحی

۲ - دمای کوری و دیاگرام‌های فاز

وقتی از دماهای پایین به دمای کوری T_c نزدیک می‌شویم؛ متوسط حرارتی اسپین‌ها به صفر میل می‌کنند. از آنجا که جملات مرتبه بالاتر R_n سریعتر صفر می‌شوند، لذا در دمای T_c تنها جملات خطی R_n را نگه می‌داریم. اگر روابط (۴) تا (۶) را برای T_c بنویسیم، به دستگاه معادلات زیر می‌رسیم.

$$(4\frac{J_s}{J} - X_s)R_1 + \frac{J_s}{J}R_2 = 0 \quad (10)$$

$$\frac{J_s}{J}R_1 + (4\frac{J_s}{J} - X_s)R_2 + R_3 = 0 \quad (11)$$

$$R_{n-1} + (4 - X)R_n + R_{n+1} = 0 \quad (12)$$

که در معادلات فوق

$$X = \frac{2\Omega}{J} \text{Coth}\left(\frac{\Omega}{2K_B T_c}\right) \quad (13)$$

$$X_s = \frac{2\Omega_s}{J} \text{Coth}\left(\frac{\Omega_s}{2K_B T_c}\right) \quad (14)$$

دمای کوری فیلم $T_c(J_s, \Omega_s, \Omega)$ را می‌توان از این شرط که در دستگاه معادلات همگن برای داشتن جواب غیرصفر باید دترمینان ضرایب صفر شود، به دست آورد. با دنبال کردن عبارات می‌توان دمای کوری یک فیلم N لایه‌ای با تعداد لایه‌های سطحی متفاوت را به دست آورد.

برای یک لایه سطحی ($N_s=1$)

$$(X_s - \frac{4J_s}{J})B_{M-1} - B_{M-2} = 0 \quad (15)$$

و برای دو لایه سطحی ($N_s=2$)

$$[(X_s - \frac{4J_s}{J})^2 - (\frac{J_s}{J})^2]B_{M-2} - (X_s - \frac{4J_s}{J})B_{M-3} = 0 \quad (16)$$

در این معادلات برای فیلم‌هایی با تعداد لایه‌های زوج ($M = \frac{N}{2}$)

$$B_M = \frac{\text{Sinh}[(M+1)\Phi] - \text{Sinh}[M\Phi]}{\text{Sinh}\Phi} \quad (17)$$

و برای فیلم‌هایی با تعداد لایه‌های فرد ($M = \frac{(N+1)}{2}$)

$$B_M = 2\text{Cosh}[M\Phi] \quad (18)$$

که در این روابط داریم:

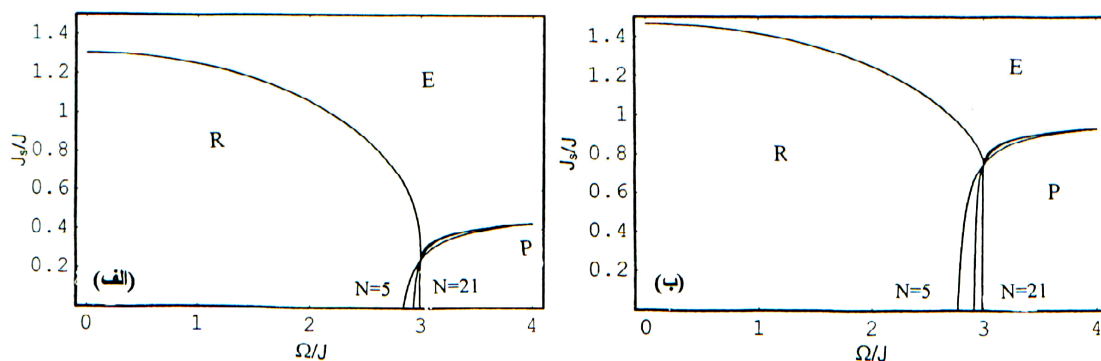
$$\text{Cosh}\Phi = \frac{X-4}{2} \quad (19)$$

وقتی $X-4 < 2$ باشد معادلات فوق هنوز حفظ می‌شوند؛ اما توابع هیپربولیک به توابع مثلثاتی تبدیل می‌شوند. به منظور به دست آوردن دیدی کلی از دیاگرام‌های فاز رهیافت سارمنتو و تاکر در ۱۹۹۳ را دنبال می‌کنیم [۴].

دیاگرام فاز را در صفحه $(\frac{J_s}{J}, \frac{\Omega}{J})$ برای N_s و $\frac{\Omega_s}{J}$ مختلف به صورت پارامتری رسم می‌کنیم. برای تشخیص سه ناحیه دیاگرام‌های فاز، فاز پارالکترونیک را با P ، فاز فروالکترونیک با قطبش سطحی کاهش یافته را با R که در این حالت $T_c(\text{film}) < T_c(\text{bulk})$ و فاز فروالکترونیک با قطبش سطحی افزایش یافته را با E که در این حالت $T_c(\text{film}) > T_c(\text{bulk})$ نشان می‌دهیم. نمودارهای دیاگرام فاز به ازای $T=T_c$ و برای تعداد لایه‌های سطحی N_s مختلف از معادلات (۱۵) و (۱۶) به دست می‌آیند. این نمودارها دارای دو شاخه هستند. شاخه اول که مرز میان R و E و مستقل از ضخامت فیلم (تعداد لایه‌های اتمی) است، به ازای $x=6$ و

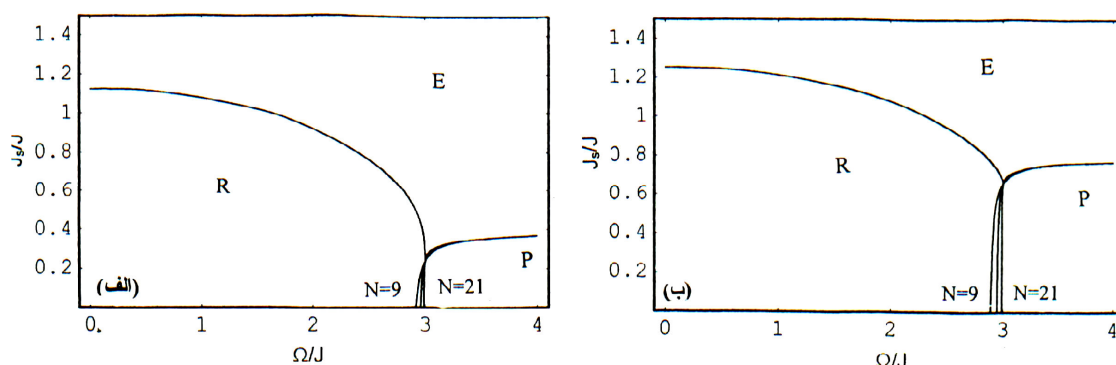
$T_c(\text{film})=T_c(\text{bulk})$ و رابطه (۱)، $\Phi=0$ می‌شود و در نتیجه با توجه به معادلات (۱۷) و (۱۸) B_m ها مستقل از N می‌شوند. بنابراین مرز R/E مستقل از ضخامت فیلم است؛ در حالی که مرز R/P وابسته به ضخامت فیلم است و با افزایش ضخامت به سمت ناحیه p جا به جا می‌شود.

شکل (۲) دیاگرام‌های فاز فیلم‌هایی با یک لایه سطحی ($N_s=1$) را برای دو مقدار متفاوت Ω_s/J را نشان می‌دهد. به منظور بحث در این منحنی‌ها معادله هامیلتونی (۱) را فراخوانی می‌کنیم. میدان تونلی Ω اساساً یک عامل بی‌نظمی در سیستم است. از این رو چنانکه Ω افزایش می‌یابد، دمای کوری T_c کم می‌شود؛ به طوریکه برای $\frac{\Omega}{J}=3$ دمای کوری صفر خواهد شد. پس با توجه به اثر میدان تونلی در ناحیه $\Omega > \Omega_s$ نظم سطحی بهتر از نظم کپه است و برای $\Omega < \Omega_s$ برعکس با بزرگ شدن $\frac{J_s}{J}$ نظم سطحی بهتر می‌شود، به طوری که اگر $\frac{J_s}{J}$ به اندازه کافی بزرگ شود، اثر کاهش تعداد مختصات در لایه سطحی را جبران می‌کند.



شکل ۲. دیاگرام‌های فاز در صفحه $(\Omega_s/J, J_s/J)$ برای فیلم‌هایی با یک لایه سطحی ($N_s=1$) که در آن مربوط به فاز R کاهش یافته $(T_c(\text{film}) < T_c(\text{bulk}))$ و E مربوط به فاز افزایش یافته $(T_c(\text{film}) > T_c(\text{bulk}))$ و P فاز پارالکترونیک است. (الف) $\Omega_s/J=1$ (ب) $\Omega_s/J=2$

افزایش تعداد لایه باعث جا به جایی مرز R/P به سمت ناحیه پارالکترونیک می‌شود. در شکل (الف-۲) برای Ω های کوچک مقدار $\frac{J_s}{J}$ در مرز R/E به گونه‌ای است که کاهش تعداد مختصات در لایه سطحی و همچنین کوچکی Ω_s را برآورد می‌کند. با افزایش Ω و در نتیجه کاهش $T_c(\text{bulk})$ ، مرز R/E به سمت مقادیر کوچک $\frac{J_s}{J}$ جابجا می‌شود و برآمدگی جزئی آن از این حقیقت که Ω_s ثابت نگه داشته شده ناشی می‌شود، در شکل (ب-۲) دیده می‌شود که برای Ω های کوچک با بزرگ شدن Ω_s مقدار $\frac{J_s}{J}$ برای گذار R/E افزایش می‌یابد. همانطور که انتظار می‌رود، افزایش Ω_s باعث کاهش نظم سطحی شده و در نتیجه تمام منحنی مرزی R/E به سمت مقادیر بزرگتر $\frac{J_s}{J}$ جا به جا می‌شود. نمودارهای مربوط به فیلم‌های دو لایه سطحی در شکل (۳) نشان داده شده است. با مقایسه با شکل (۲) از آنجا که تعداد لایه‌های سطحی کسر بزرگتری از حجم کل فیلم را تشکیل می‌دهند، منحنی‌های مرزی به سمت مقادیر کوچکتر $\frac{J_s}{J}$ حرکت می‌کنند.



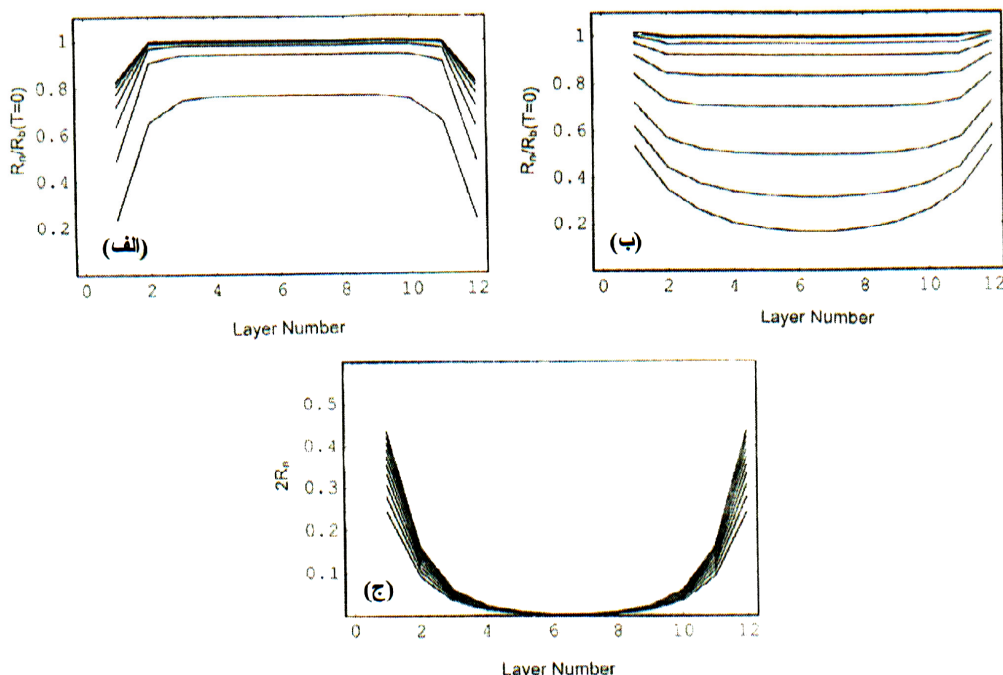
شکل ۳. دیاگرامهای فاز در صفحه $(\Omega_s/J, J_s/J)$ برای فیلم‌های با دو لایه سطحی $(N_s=2)$. (الف) $\Omega_s/J=1$ (ب) $\Omega_s/J=2$

۳ - بررسی نیمرخ‌های قطبش در لایه‌های نازک فروالکتريک

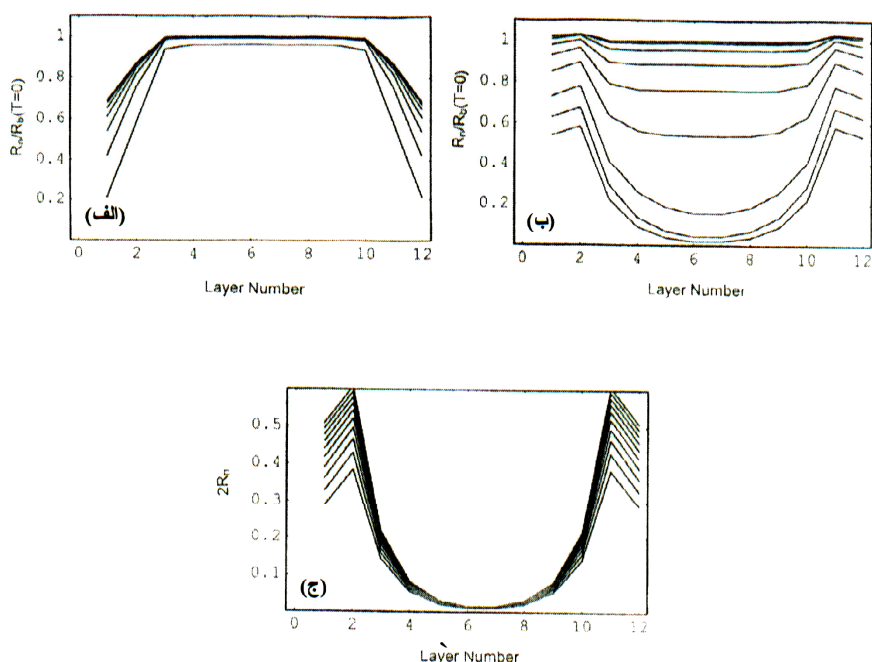
مقدار موضعی قطبش در فیلم‌های فروالکتريک با کمیت بدون بُعد R_n که در معادله (۲) تعریف شده، متناسب است و معادلات (۴) تا (۹) را برای $N_s=2$ برآورد می‌کند. این معادلات را می‌توان به طور عددی حل کرده و نمودارهای R_n بر حسب n را رسم کرد. این جواب‌ها معادل منفصل نیمرخ‌های پارامتر نظم هستند، که از تئوری پیوستگی کتام و همکارانش [۵] در ۱۹۸۴ و تیلی [۶] در ۱۹۹۳ به دست آمده‌اند. برای رسم نیمرخ‌های قطبش به روش عددی، حل تقریبی معادلات (۴) تا (۹) را از طریق الگوریتم نیوتون - رافسون به دست می‌آوریم. در این روش شروع حل در پایینترین دم حدس زده می‌شود و متعاقباً در دمایی داده شده حل خود سازگاری از دمایی پیشین به دست می‌آید. تغییرات دما را به صورت نسبت $\frac{T}{T_c(film)}$ در نظر می‌گیریم.

شکل (۴) نیمرخ‌های قطبش را برای یک فیلم دوازده لایه‌ای و برای $N_s=1$ (فیلم‌هایی با یک لایه سطحی) نشان می‌دهد هر سه نمودار برای $\frac{\Omega_s}{J}=1$ که مربوط به دیاگرام فاز (۲-الف) می‌شود، رسم شده‌اند. پارامترهای نمودار (۴-الف) مربوط به نقطه‌ای در ناحیه R (قطبش سطحی کاهش یافته) دیاگرام فاز شکل (۲-الف) است، با توجه به شکل (۴) قطبش در سطح فیلم در همه دماها به پایین منحرف شده است. انحنای قطبش مرکز فیلم تنها در نزدیکی دمایی کوری قابل تشخیص است. نمودار (۴-ب) برای نقطه‌ای در ناحیه E (قطبش سطحی افزایش یافته) دیاگرام فاز است، که مقدار R_n در نزدیکی سطح افزایش یافته است. نمودار (۴-ج) نیز برای نقطه دیگری در ناحیه E دیاگرام فاز که در آنجا $\frac{\Omega_s}{J} > 3$ است، رسم شده است، که در این مورد در کپه فاز پارالکتريک محسوس است. اثر افزایش تعداد لایه‌های سطحی باعث انتقال ماکزیمم قطبش به زیر لایه‌های $n=2$ و $n=11$ می‌شود. کاهش قطبش در لایه‌های سطحی $n=1$ و $n=12$ مربوط به اثر کاهش تعداد مختصات در سطح است. در فیلم‌های با دو لایه سطحی انحنای قطبش مرکز فیلم از مقادیر توده‌ای بیشتر است. مشاهده می‌شود و R_n تنها در نزدیکی سطوح مقدار قابل توجهی دارد. نمودارهای مربوط به حالت دو لایه سطحی $N_s=2$ در شکل (۵) نشان

داده شده است. تفاوت شکل (۵) با شکل (۴) بیشتر در منحنی ناحیه E (شکل ۵-الف و ب) منعکس است.



شکل ۴. نیمرخ‌های پارامتر نظم R_n بر حسب n برای یک فیلم دوازده لایه‌ای با $N_s=1$ که پارامترها به صورت (الف) $J_s/J=0.5, \Omega_s/J=1$ ، (ب) $J_s/J=1, \Omega_s/J=1$ و (ج) $J_s/J=1.5, \Omega_s/J=1$ است. در (الف) و (ب) مقدار R_0 برای مواد کیه‌ای در دمای صفر است و در (ج) محور قائم $2R_n$ است. منحنی‌ها مربوط به نسبت دماهای $T/T_c(film)$ و $1/8$ و $1/9$ است. پائین‌ترین منحنی مربوط به بالاترین نسبت دما است.



شکل ۵. نیمرخ‌های پارامتر نظم و R_n بر حسب n برای فیلم‌های دوازده لایه‌ای $N_s=2$ که پارامترهای شکل‌های (الف، ب و ج) همان پارامترهای شکل (۴) است

نتیجه گیری

ما تئوری میدان متوسط را برای فیلم‌های نازک فروالکتریک که با استفاده از مدل آیزینگ توصیف شده‌اند، بسط داده‌ایم و عبارات کلی دمای کوری را برای پارامترهای مختلف مدل به دست آورده‌ایم. در اینجا مشاهده می‌شود که دیاگرام‌های فازدارای سه ناحیه هستند. فاز فروالکتریک با قطبش سطحی کاهش یافته R ، فاز فروالکتریک با قطبش سطحی افزایش یافته E و فاز پارالکتریک که مرز بین R و E مستقل از ضخامت فیلم است. اما مرز بین فاز فروالکتریک و پارالکتریک وابسته به ضخامت است و با افزایش ضخامت به سمت ناحیه پارالکتریک جا به جا می‌شود. وقتی قدرت تبادل سطحی خیلی قوی است، حتی جایی که هیچ گذار فاز کپه‌ای وجود ندارد هنوز گذار فاز در فیلم‌ها دیده می‌شود. برای فاز فروالکتریک با قطبش سطحی کاهش یافته همواره قطبش در سطح به سمت پایین خمیده می‌شود و همانطور که تعداد لایه‌های سطحی افزایش می‌یابد قطبش لایه‌های داخلی‌تر به پایین خمیده می‌شود. برای فاز فروالکتریک با قطبش سطحی افزایش یافته در فیلمی با یک لایه سطحی ماکزیمم قطبش در خارجی‌ترین لایه سطحی دیده می‌شود، اما وقتی که تعداد لایه‌های سطحی بیشتر از یکی می‌شود این ماکزیمم قطبش به لایه دوم منتقل می‌شود. دلیل آن رقابت تعداد مختصات و قدرت تبدیلی شبه اسپین‌ها است.

تشکر و قدر دانی

بدینوسیله از زحمات جناب آقای دکتر نجفی معاونت محترم پژوهشی دانشکده علوم در رابطه با پی گیری‌های لازم جهت تهیه امکانات برای انجام تحقیقات تشکر و قدردانی به عمل می‌آید.

مراجع

1. R. Blinc and B. Zeks, Soft Modes in Ferroelectrics and Antiferroelectris (Amsterdam: North-Holland) (1974).
2. M.G. Cottam, D. R. Tilley and B. Zeks, J.Phys. C: Solid State Phys. Vol.17, (1984) 1793.
3. H. K. Sy, J.Phys.: Condens. Matter 5, (1993) 1213
4. E. F. Sarmiento and J.W. Tucker, J.Magen.Magen.Mater.118, (1993) 133.
5. Wang Xuan-Zhang, Jian Xiv-Ye and Wang Jaing-Jv, J. Phys.:Condens.Matter 4 (1992) 3651.
6. D.R. Tilley, Ferroelectric Ceramics de N Setter and E L Colla (Basel: Birkhauser) (1993)163.