

# 横场-伊辛模型中 BaTiO<sub>3</sub> 的铁电行为\*

张 磊 钟维烈

(山东大学物理系 济南 250100)

(2000 年 4 月 23 日收到)

采用横场-伊辛模型描述了 BaTiO<sub>3</sub> 中量子效应对铁电行为可能的贡献. 计算显示量子效应可以明显地减少铁电体的自发极化. 模型给出的理论结果与 BaTiO<sub>3</sub> 的介电及极化实验结果符合较好.

关键词: 铁电性, 量子效应, BaTiO<sub>3</sub>

PACC: 7722E, 7780B

通常, 量子效应仅仅对包含轻原子的材料的热力学性质有重要的影响. 然而, 由于在立方钙钛矿材料中不同的对称结构仅有一个小的能量差别, 量子漂移会对它们的性质产生决定性的影响<sup>[1]</sup>. Zhong 和 Vanderbilt 研究了量子漂移对 SrTiO<sub>3</sub> 和 BaTiO<sub>3</sub> 结构相变的影响. 对于 SrTiO<sub>3</sub>, 随着温度的下降, 热漂移快速下降, 同时量子漂移却呈现上升趋势. 对于 BaTiO<sub>3</sub>, 他们发现量子漂移可以使相变温度降低 35—50K.

以往已有一些实验证据结论性地显示了钙钛矿铁电体在居里点以上存在多位势结构<sup>[2-4]</sup>. 可以采用有序-无序模型去描述它们的铁电相变. 我们曾利用经典的双阱势描述一些典型铁电体的极化、介电和高场性质<sup>[5,6]</sup>. 然而在这个模型中, 并没有考虑量子效应. 本工作研究 BaTiO<sub>3</sub> 中量子效应的影响.

人们已采用众所周知的横场-伊辛模型<sup>[7]</sup>从宏观的观点去解释量子顺电体和量子铁电体的相变性质<sup>[8-10]</sup>. 根据横场-伊辛模型, 本文将显示量子漂移对于铁电体的自发极化有重要的影响.

为了在量子力学的框架内去表征偶极矩的相互作用, 人们<sup>[8-10]</sup>建议使用下面的哈密顿量:

$$H = -\Omega \sum_i S_i^x - \frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} S_i^z S_j^z - 2\mu_0 E \sum_i S_i^z, \quad (1)$$

式中  $i \neq j$ , 向上和向下的自旋  $S$  分别等于  $1/2$  或  $-1/2$ ,  $E$  为外场,  $\mu_0$  为每个自旋的有效偶极矩  $J_{ij}$

为偶极子间的相互作用,  $\Omega$  为隧穿频率. 规定  $\langle S_i^z \rangle = \langle S_j^z \rangle = \langle S^z \rangle$ ,  $J_0 = \sum_j J_{ij}$ . 在顺电相  $J_0$  和  $\mu_0$  为两个常数. 然而, 铁电相的铁电畸变可以改变作用力  $J$  和偶极矩  $\mu$ <sup>[5,6]</sup>. 在后面的计算中, 为了减少可调参数, 假设  $\mu = \mu_0$ . 对于作用力项, 假设

$$J = J_0(1 + F_i P^i) \quad i = 2, 4, 6, \dots, \quad (2)$$

式中  $F_i$  为常数, 这些常数表征了铁电畸变对作用力  $J$  的调制. 对于受夹晶体, 将有  $F_i = 0$ .

根据平均场近似, 可得

$$\langle S^z \rangle = \frac{1}{2} \frac{J \langle S^z \rangle + 2\mu E}{H} \tanh\left(\frac{H}{2k_B T}\right), \quad (3)$$

式中  $H = \sqrt{\Omega^2 + (J \langle S^z \rangle + 2\mu E)^2}$ . 极化  $P = 2N\mu \langle S^z \rangle$ ,  $N$  为偶极矩在晶体中的密度. 介电常数可以假设对晶体施加一个非常微弱的电场, 通过微分方程(3)而得到

对于受夹晶体, 铁电畸变的影响可以忽略. 这样在居里-外斯温度处极化为零. 根据(3)式, 可得

$$\frac{2\Omega}{J_0} = \tanh\left(\frac{\Omega}{2k_B T_C}\right). \quad (4)$$

文献[1]显示量子漂移可以使 BaTiO<sub>3</sub> 的居里温度下降 31K. 这样根据(4)式可以近似得到在实际的居里-外斯温度处  $\Omega$  等于  $2k_B T_1$ , 其中  $T_1$  等于 192.2K. 进而, Zhong 和 Vanderbilt<sup>[1]</sup>证实了量子漂移随温度的下降而均匀地上升. 这暗示隧穿频率会随温度的下降而平缓地上升. 假设

\*国家重点基础研究发展规划(批准号 G19980614-04-06)资助的课题.

$$\Omega = g\Omega_{T_0}\left(1 - \frac{T}{391}\right) + \Omega_{T_0}, \quad (5)$$

式中  $g$  为常数, 根据 (5) 式, 当温度从 391K 下降到 0K 时隧穿频率  $\Omega$  会从  $\Omega_{T_0}$  上升到  $\Omega_{T_0} + g\Omega_{T_0}$ . 这样 (3) 式中  $k_B T$  项代表了热漂移的贡献, 而隧穿频率  $\Omega$  代表了量子漂移的贡献.

根据 (3) 式, 顺电相的介电常数为

$$\epsilon = 1 + \frac{N\mu_0^2/\epsilon_0}{(\Omega/2)\coth(\Omega/2k_B T) - J_0/4}. \quad (6)$$

根据 (6) 式和 BaTiO<sub>3</sub> 的实验介电行为, 可以得到 BaTiO<sub>3</sub> 的  $\mu_0$  与常数  $g$  的对应关系, 如图 1 所示. 图 1 中, 当  $g=0$  时偶极矩  $\mu_0$  为  $0.217e \cdot nm$ . 当  $g$  上升时,  $\mu_0$  线性地下降. 经典模型显示 BaTiO<sub>3</sub> 的  $\mu_0$  为  $0.228e \cdot nm$ . 看起来与经典模型相比, 量子模型倾向于给出更小的偶极矩.

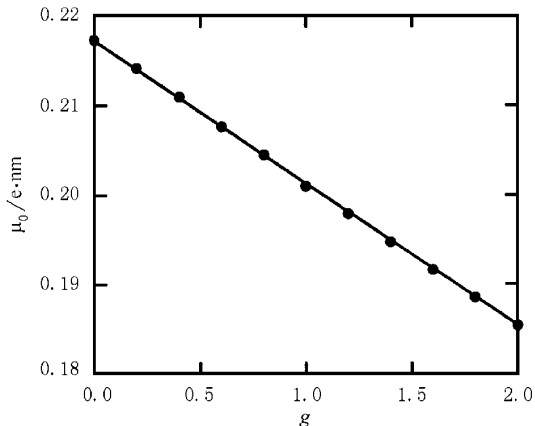


图 1 BaTiO<sub>3</sub> 晶体的参数  $g$  与偶极矩  $\mu_0$  的关系

与自由晶体相比, 受夹晶体的物理机制更为简单. 相关于铁电畸变的因素可以忽略. 在这种状态下, 可以得到一些更加直接和深入的结论. 图 2 示出受夹 BaTiO<sub>3</sub> 晶体的经典极化和量子极化的温度依赖性. 图 2 显示, 对于受夹晶体而言, 其相变为二极相变. 在量子结果中, 极化会随  $g$  的上升而下降. 下降来源于两部分, 小部分来源于偶极矩的下降, 正如图 1 所示, 大部分来源于量子漂移的上升. 很明显, 当  $g$  上升到某一个值以后, 极化将保持为零. 这意味着包含了热漂移和量子漂移的总漂移或者不随温度变化, 或者随温度下降而上升. 根据文献 [1], 总漂移仅随温度的下降缓慢地下降, 然而热漂移却快速地下降. 这意味着  $g$  应该明显地大于零. 这样根据图 2 量子极化应该明显小于经典极化. 例如, 在图 2 的整个温度范围内, 经典极化是  $g=2$  的量子极化

的两倍左右.

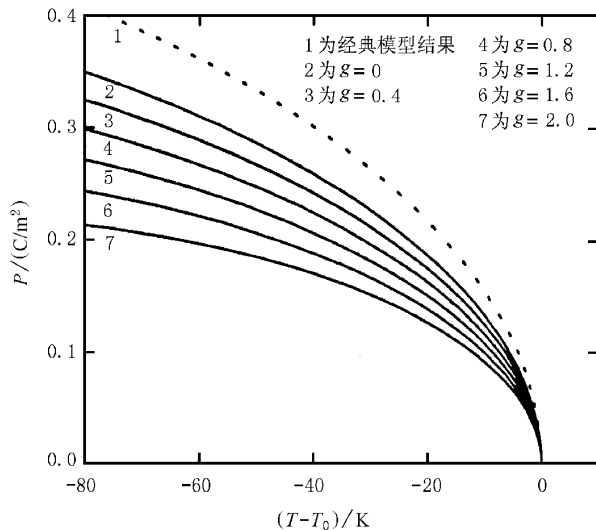


图 2 受夹 BaTiO<sub>3</sub> 晶体的极化  $P$  的温度依赖性 —— 为计及量子效应的结果, ... 为经典模型结果

对于自由的 BaTiO<sub>3</sub> 晶体, 根据 (3) 式通过调整  $F_i$  可以得到它的极化温度响应. 表 1 列出 BaTiO<sub>3</sub> 的一些参数. 图 3 示出自由 BaTiO<sub>3</sub> 晶体极化的温度依赖性. 理论结果与实验结果 [11] 符合较好. 图 3 中自由 BaTiO<sub>3</sub> 晶体的极化在居里点  $T_C$  处会从  $P \neq 0$  的状态跳跃到  $P = 0$  的状态. 本文的计算显示 BaTiO<sub>3</sub> 的极化在居里点为  $0.165 \mu C/cm^2$ .

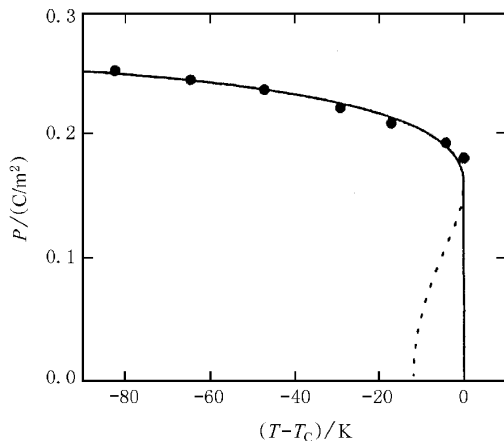


图 3 自由 BaTiO<sub>3</sub> 晶体的极化  $P$  的温度依赖性 ● 为实验结果 [11], —— 为稳定的理论解, ... 为不稳定的理论解

表 1 BaTiO<sub>3</sub> 晶体的参数值

材料	$T_0/K$	$T_C/K$	$J_0/eV$	$F_2/(m^4/C^2)$	$F_4/(m^8/C^4)$	$F_6/(m^{12}/C^6)$
BaTiO <sub>3</sub>	391 <sup>[11]</sup>	403 <sup>[11]</sup>	0.14	2.6	16	-860

图 4 示出自由 BaTiO<sub>3</sub> 晶体介电常数的温度依赖性. 对于 BaTiO<sub>3</sub>, 它的介电常数  $\epsilon$  在居里点  $T_C$  无穷大. 在一级相变铁电体的顺电相,  $\epsilon$  为有限的. 这样 BaTiO<sub>3</sub> 的介电常数在  $T_C$  有一个跳跃. 在铁电相, 我们把介电常数近似定义为  $\epsilon = C/(T - T'_0)$ . 计算显示 BaTiO<sub>3</sub> 的  $C/C'$  为 8.3. 铁电相的  $1/\epsilon-T$  曲线仅在  $T_C$  附近偏离线性关系.

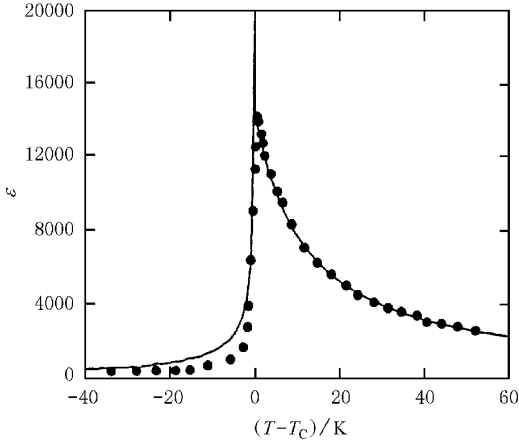


图 4 自由 BaTiO<sub>3</sub> 晶体的介电常数  $\epsilon$  的温度依赖性 —— 为理论结果, ●为实验结果<sup>[11]</sup>

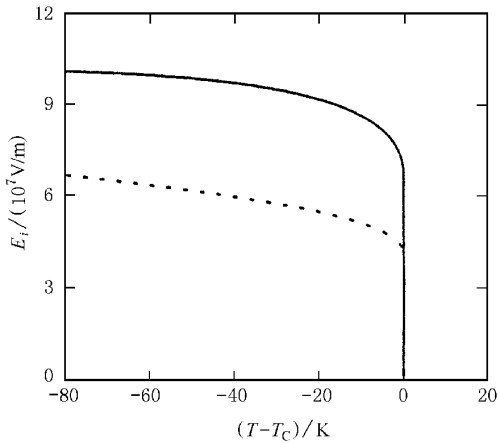


图 5 自由 BaTiO<sub>3</sub> 晶体的内场的温度依赖性 —— 为  $g = 1.6$  的量子模型结果, · · · 为经典模型结果

在我们的模型中, 由偶极矩相互作用引起的晶体内场  $E_i$  应为  $J \cdot P / (4N\mu^2)$ . 图 5 示出自由 BaTiO<sub>3</sub>

晶体的内场  $E_i$  随温度的变化关系. 经典模型的  $E_i$  可以利用文献 [5, 6] 的物理参数得到. 在图 5 中, 本模型给出的  $E_i$  明显大于经典模型的值. 事实上, 当本模型和经典模型都可以解释极化的实验结果时, 与经典模型的结果相比, 当前模型必须有一个更大的  $E_i$  去压制量子漂移.

根据(3)式, 可以计算 BaTiO<sub>3</sub> 的高场性质. 假如我们观察 BaTiO<sub>3</sub> 的  $T_C$  与电场强度的关系, 可以得到一个线性关系. 计算显示 BaTiO<sub>3</sub> 的  $dT_C/dE$  的值为  $1.0 \times 10^5 \text{ V/m}$ . 这个计算值与实验测定的  $1.4 \times 10^5 \text{ V/mf}^{[11]}$  和  $1.2 \times 10^5 \text{ V/mf}^{[12]}$  两值符合得非常好. 根据我们对于 BaTiO<sub>3</sub> 电滞回线的计算, 双回线的理论宽度为 12K. 该值与实验测定的 15K<sup>[13]</sup> 也符合得很好.

总之, 在横场-伊辛模型中隧穿频率与温度的关系的改变可以明显改变铁电体的自发极化. 这意味着量子漂移可以明显地改变高温铁电体的铁电行为.

[1] W. Zhong, D. Vanderbilt, *Phys. Rev.*, **B53** (1996) 5047.  
 [2] R. Comes, M. Lambert, A. Guinier, *Solid State Commun.*, **6** (1968), 715.  
 [3] N. Sicon, B. Ravel, Y. Yacoby *et al.*, *Phys. Rev.*, **B50** (1994), 13168.  
 [4] L. Zhang, W. L. Zhong, C. L. Wang, P. L. Zhang *et al.*, *Solid State Commun.*, **107** (1998) 769; L. Zhang, W. L. Zhong, C. L. Wang, Y. P. Peng *et al.*, *European Phys. J.*, **B11** (1999) 565.  
 [5] L. Zhang, W. L. Zhong, *Phys. Lett.*, **A260** (1999) 279.  
 [6] L. Zhang, W. L. Zhong, *Phys. Rev. B* to be submitted.  
 [7] R. Blinc, B. Zeks, *Soft Modes in Ferroelectrics and Antiferroelectrics* (North-Holland, Amsterdam, 1974).  
 [8] Y. G. Wang, W. Kleemann, W. L. Zhong, L. Zhang, *Phys. Rev.*, **B57** (1998) 13343.  
 [9] Y. G. Wang, W. Kleemann, J. Dec, W. L. Zhong, *Europhys. Lett.*, **42** (1998) 173.  
 [10] J. Hemberger, P. Lunkenheimer, R. Viana *et al.*, *Phys. Rev.*, **B52** (1995) 13159.  
 [11] W. J. Merz, *Phys. Rev.*, **91** (1953) 513.  
 [12] W. Känzig, N. Maikoff, *Helv. Phys. Acta*, **24** (1951) 343.  
 [13] D. Meyerhofer, *Phys. Rev.*, **112** (1958) A13.

## FERROELECTRIC BEHAVIORS OF $\text{BaTiO}_3$ IN TRANSVERSE-FIELD ISING MODEL \*

ZHANG LEI ZHONG WEI-LIE

( *Department of Physics , Shandong University , Jinan 250100 , China* )

( Received 23 April 2000 )

### ABSTRACT

By using the transverse-field Ising model , the possible contribution of the quantum effect to the ferroelectric behaviors for  $\text{BaTiO}_3$  was described. It is found that the quantum effect can reduce the ferroelectric polarization obviously. The theoretical results based on the new model are in good agreement with the experimental ones.

**Keywords** : ferroelectricity , quantum effect ,  $\text{BaTiO}_3$

**PACC** : 7722E , 7780B

---

\* Project supported by the State Key Program of Basic Research of China ( Grant No. G19980614-04-06 ).