

铁电超晶格的一个唯象模型*

徐晓虎 沈 剑

(南京大学物理系, 南京 210093)

(1999 年 2 月 5 日收到)

引入了一个描述铁电超晶格行为模式的唯象模型. 在模型中, 同时考虑体与体之间的多种耦合方式. 通过数值模拟, 得出了超晶格的极化强度、居里温度、临界尺寸和耦合系数之间的关系. 认为耦合参数 c 是一个与温度、晶格尺寸相关的函数, 进而提出了一个关于耦合参数 c 的经验公式, 解释了一个近期的关于 $\text{KTaO}_3/\text{KNbO}_3$ 超晶格材料的实验结果.

PACC: 7780

由于铁电超晶格材料重要的应用前景, 因而近年来相关的理论和实验工作不断深入^[1-4]. 早些时候, Tilley^[5]提出了一种超晶格耦合的模型, 但它只能用于讨论二级相变. Qu 等人^[6]在横场 Ising 模型中, 考虑了晶格中的四体相互作用, 引入了界面之间的耦合作用. 近期关于 $\text{KTaO}_3/\text{KNO}_3$ 超晶格材料的实验^[7]结果表明: 晶格尺寸减小到一定值后, 居里温度的变化出现了一个奇特的现象, 以前的理论工作都无法解释. 本文引入了超晶格之间体与体之间的耦合(必须注意到, 前人工作中考虑的界面之间的耦合作用已经包含在体与体之间的耦合中), 包含了多种耦合方式, 进而给出了相关的计算结果, 并与实验结果相对照, 比较结果有力地证明了该模型的有效性.

假设铁电超晶格由组元 1 和 2 组成, 相邻彼此耦合的晶格极化强度分别为 p_1, p_2 , 相邻晶格的厚度分别为 d_1, d_2 . 超晶格的自由能描述如下:

$$F = F_1 + F_2,$$

$$F_1/S = \int_{d_1}^0 \left[\frac{1}{2} A_1 p_1^2 + \frac{1}{4} B_1 p_1^4 + \frac{1}{2} D_1 \left(\frac{\partial p_1}{\partial z} \right)^2 + c_1 p_1^{-2} p_1 + \frac{1}{2} c_2 p_1^{-2} p_1^2 + \frac{1}{2} c_3 D_1 p_1^{-2} \left(\frac{\partial p_1}{\partial z} \right)^2 \right] dz \\ + \frac{1}{2} D_1 \delta_1^{-1} (p_{1,-d_1}^2 + p_{1,0}^2),$$

$$F_2/S = \int_0^{d_2} \left[\frac{1}{2} A_2 p_2^2 + \frac{1}{4} B_2 p_2^4 + \frac{1}{2} D_2 \left(\frac{\partial p_2}{\partial z} \right)^2 + c_1 p_1^{-2} p_2 + \frac{1}{2} c_2 p_1^{-2} p_2^2 + \frac{1}{2} c_3 D_2 p_1^{-2} \left(\frac{\partial p_2}{\partial z} \right)^2 \right] dz \\ + \frac{1}{2} D_2 \delta_2^{-1} (p_{2,0}^2 + p_{2,d_2}^2),$$

其中 \bar{p}_1, \bar{p}_2 为格子中 p_1, p_2 的平均值, 唯象系数 B_i, D_i 与温度无关, $A_i = a_i(T - T_{C_i})$ ($i = 1, 2$), T_{C_i} 为格子 1 和格子 2 的体材料居里温度, c_1, c_2, c_3 为体之间耦合的不同参数, δ_i

* 国家攀登计划资助的课题.

为格子 1 和格子 2 的外推长度, 是将表面层的极化强度外推到零所得出的长度, 反映了表面和内部的差别^[8].

根据自由能极小的原理, 给出两个互相耦合的欧拉方程:

$$D_1 \frac{d^2 p_1}{dz^2} = A_1 p_1 + B_1 p_1^3 + c_1 p_2 + c_2 p_2^2 p_1,$$

$$D_2 \frac{d^2 p_2}{dz^2} = A_2 p_2 + B_2 p_2^3 + c_1 p_1 + c_2 p_1^2 p_2.$$

边界条件为

$$\frac{dp_1}{dz} = \frac{p_1}{(1 + c_3 p_2^2) \delta_1}, \quad z = -d_1,$$

$$\frac{dp_1}{dz} = -\frac{p_1}{(1 + c_3 p_2^2) \delta_1}, \quad z = 0,$$

$$\frac{dp_2}{dz} = \frac{p_2}{(1 + c_3 p_1^2) \delta_2}, \quad z = 0,$$

$$\frac{dp_2}{dz} = -\frac{p_2}{(1 + c_3 p_1^2) \delta_2}, \quad z = d_2.$$

采用四阶龙格库塔法可以求解以上联立方程.

首先讨论体之间的耦合对于系统状态的影响. 在铁电超晶格中, 铁电相的严格定义是 $p_1 = p_2 \neq 0$. 从图 1 可看出, 随耦合参数 c_1 增大, 晶格 1 和晶格 2 中的自发极化强度都随之增大, 并且趋于相等, 亦即随耦合强度增大, 系统从亚铁电相趋近并最终稳定于铁电相, 这个结果表明体之间的耦合有利于系统进入铁电相. 进一步讨论了不同的耦合参数 c_1 , c_2 , c_3 分别对于铁电超晶格状态的影响, 结果表明(见图 2): 三者的作用都是使系统趋于铁电相, 但是三者的作用强度不等, 一阶项 $c_1 p_1 p_2$ 占主导作用, 因此以下的讨论主要围

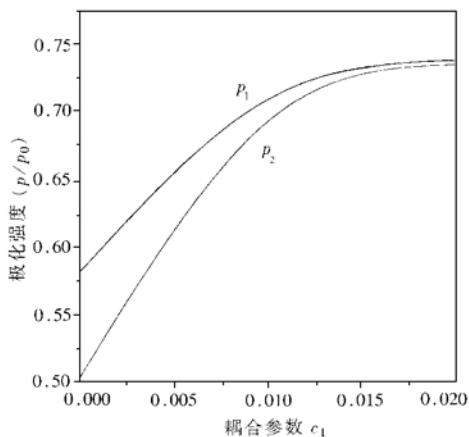


图 1 相邻亚晶格中平均极化强度与耦合参数之间的关系曲线 $d_1 = d_2 = 1$, $a_1 = b_1 = 0.01$, $a_2 = b_2 = 0.008$, $T_{C\infty 1} = T_{C\infty 2} = 1$, $T = 0$, $c_2 = c_3 = 0$

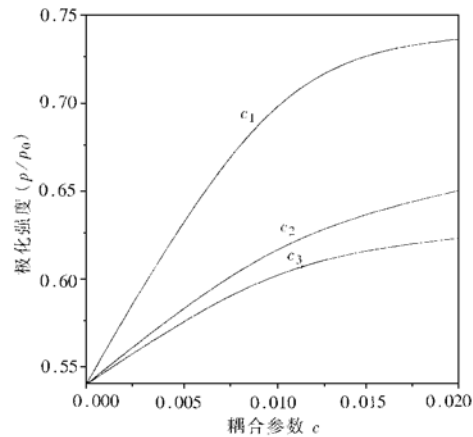


图 2 超晶格中平均极化强度与不同耦合参数之间的关系曲线 $d_1 = d_2 = 1$, $a_1 = b_1 = 0.01$, $a_2 = b_2 = 0.008$, $T_{C\infty 1} = T_{C\infty 2} = 1$, $T = 0$

统一阶项展开. 通过计算得出了超晶格材料的居里温度、临界尺寸与耦合系数之间的关系. 从图 3 和图 4 可以看出: 随耦合强度增大, 系统的居里温度也随之升高, 而临界尺寸随之降低. 这个结果与前面的结论一致. 以上的计算表明: 在铁电超晶格中, 虽然构成的组元是两种不同的铁电材料, 但是随体之间耦合的增强, 相邻超晶格的铁电性质(如极化强度等)也会趋于一致, 从宏观角度来分析, 超晶格会趋于严格的铁电相($p_1 = p_2 \neq 0$).

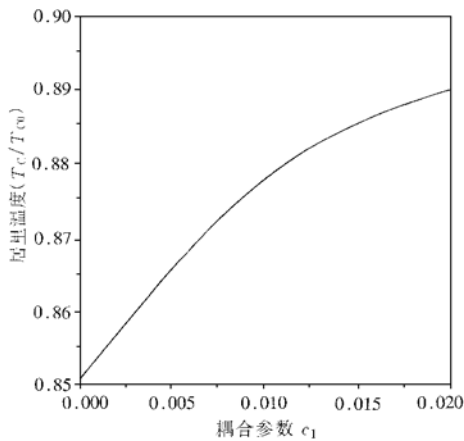


图 3 超晶格的居里温度与耦合参数之间的关系曲线 $d_1 = d_2 = 1, a_1 = b_1 = 0.01, a_2 = b_2 = 0.008, T_{C\infty 1} = T_{C\infty 2} = 1, T = 0, c_2 = c_3 = 0$

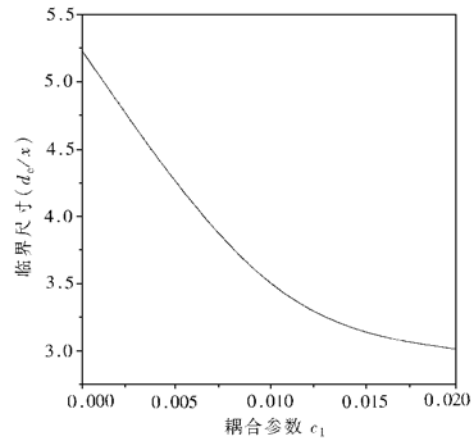


图 4 超晶格的临界尺寸与耦合参数之间的关系曲线 $d_1 = d_2 = 1, a_1 = b_1 = 0.01, a_2 = b_2 = 0.008, T_{C\infty 1} = T_{C\infty 2} = 1, T = 0, c_2 = c_3 = 0$

如果假设一阶耦合项 $c_1 p_1 p_2$ 中的 c_1 为常数, 则可算出系统的居里温度随晶格尺寸变化的趋势, 结果见图 5. 图 5 表明随超晶格尺寸减小, 材料的居里温度也随之降低, 这个

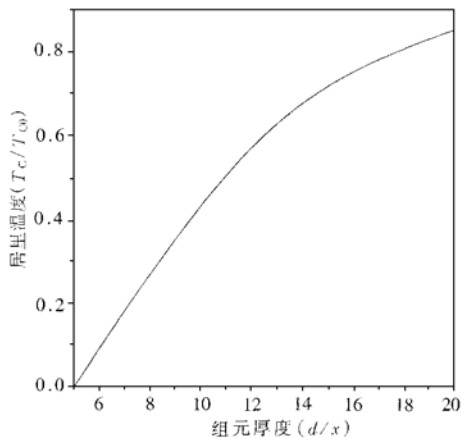


图 5 耦合参数为常数时超晶格的居里温度与晶格尺寸之间的关系曲线 $d_1 = d_2 = 1, a_1 = b_1 = 0.01, a_2 = b_2 = 0.008, T_{C\infty 1} = T_{C\infty 2} = 1, T = 0, c_1 = \text{const}, c_2 = c_3 = 0$

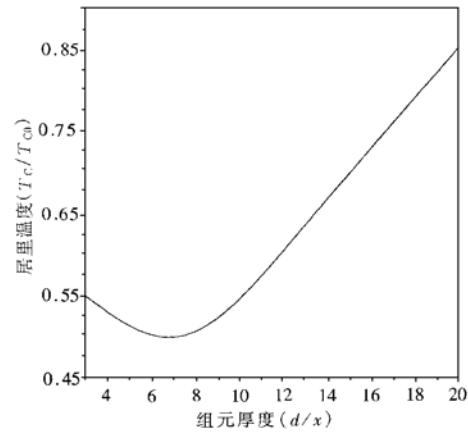


图 6 对耦合参数进行修正以后, 超晶格的居里温度与晶格尺寸之间的关系曲线 $d_1 = d_2 = 1, a_1 = b_1 = 0.01, a_2 = b_2 = 0.008, T_{C\infty 1} = T_{C\infty 2} = 1, T = 0, c_1 = c/d^2, c = 1, c_2 = c_3 = 0$

结果和一般铁电薄膜材料的性质一致. 而 Specht 等人的实验证实: 当一定的铁电超晶格材料的尺寸降低到一定范围以后, 随尺寸降低, 居里温度出现奇特的升高现象. 因此可以认定: 耦合参数是一个关于超晶格尺寸和环境温度的函数, 即

$$c_1 = c_1(d, T), \quad c_2 = c_2(d, T), \quad c_3 = c_3(d, T).$$

本文首先讨论超晶格尺寸对于耦合参数 c_1 的影响, 假设相互之间的耦合作用与距离的平方成反比, 从而引入如下经验公式:

$$c_1 = c/d^2,$$

其中 c 为常数, d 为超晶格尺寸.

对于唯象模型进行如上修正以后, 通过计算得到了图 6. 从图 6 可以看出, 当超晶格尺寸很小时, 随尺寸降低, 居里温度反而升高. 理论模型很好地解释了实验结果.

- [1] K. Binder, *Ferroelectrics*, **35**(1981), 99.
- [2] D. R. Tilley, in *Ferroelectric, Ceramics*, edited by N. Setter, E. Colla (Birkhauser, Basel, 1992), p. 163.
- [3] D. R. Tilley, B. Zeks, *Ferroelectrics*, **134**(1992), 313.
- [4] R. Krestschmer, K. Binder, *Phys. Rev.*, **B20**(1979), 1065.
- [5] D. R. Tilley, B. Zeks, *Solid State Commun.*, **49**(1984), 823.
- [6] B. D. Qu, W. L. Zhong, R. H. Prince, *Phys. Rev.*, **B55**(1997), 11218.
- [7] E. P. Specht, H. M. Christen, D. P. Norton *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **80**(1998), 19, 4317.
- [8] W. L. Zhong, Y. G. Wang, P. L. Zhong, *Phys. Lett.*, **A189**(1994), 121.

A PHENOMOLOGICAL MODEL FOR FERROELECTRIC SUPERLATTICES*

XU XIAO-HU SHEN JIAN

(*Department of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093*)

(Received 5 February 1999)

ABSTRACT

We introduce a phenomenological model to describe the characters of ferroelectric superlattices. Three kinds of coupling ways are considered in the model. The polarization, Curie temperature and the critical size of the superlattices are obtained by computational simulation. We think that the coupling coefficients are functions related with the temperature and the lattice size. An experience formula is introduced to explain recent experimental results about the $\text{KTaO}_3/\text{KNbO}_3$ superlattice material.

PACC: 7780

* Project supported by the National "Climbing" Program of China.