

用于铁电体复杂畴结构模拟的布朗方程*

欧阳鑫健 张紫阳 张锋 张佳乐 王大威†

(西安交通大学电子与信息学部微电子学院, 西安 710049)

(2022年11月10日收到; 2022年12月8日收到修改稿)

铁电材料在室温下具有可以在外加电场作用下改变方向的自发极化, 不同方向的极化在材料内部形成畴结构, 会对其物理特性和实际应用具有显著影响. 本文将最初用于微磁模拟的布朗方程引入铁电材料的大尺度模拟中, 研究其中可能出现的重要畴结构. 在以有效哈密顿量方法为基础推导出铁电材料中关于电偶极子的布朗方程后, 以 BaTiO_3 , PbTiO_3 块体和 $\text{SrTiO}_3/\text{PbTiO}_3/\text{SrTiO}_3$ 夹心结构等钙钛矿铁电材料为研究对象, 验证了布朗方程的有效性并讨论了其中的多种畴结构, 如周期性条带状畴、涡旋型拓扑畴结构等, 并与相关实验结果进行了对比分析.

关键词: 拓扑畴, 布朗方程, 钙钛矿**PACS:** 75.70.Kw, 75.30.Cr, 77.90.+k**DOI:** 10.7498/aps.72.20222150

1 引言

在过去二十年里, 随着对微型和纳米级元器件需求的日益增长, 铁电畴和它们之间的畴壁作为可能的电子器件引起了越来越多的关注^[1]. 在铁电体中, 电极化取向均匀的微小区域形成电畴, 而畴和畴壁对铁电体性能有重要影响. 一方面, 可以通过外场对畴和畴壁进行调控, 增强材料已有的功能特性, 如宏观压电响应、介电系数和电导率, 并影响相变^[2-6]. 另一方面, 某些特殊的畴结构, 如斯格明子等, 为研发更加先进的纳米器件带来了光明前景^[7-9]. 不难看出, 研究铁电材料的拓扑畴结构除了理论意义外, 还具有一定的应用价值.

铁电体的拓扑畴结构是材料从高温顺电相经历居里温度 T_c , 发生对称性破缺后形成的有序相, 一般将这种特殊的畴结构称为拓扑缺陷^[10]. 目前在实验和理论上对铁电体的拓扑畴结构研究都有许多进展. 实验上, 研究人员已在纳米颗粒、薄膜、

超晶格多种铁电材料中观察到电偶极子形成的拓扑结构. 例如, 路璐等^[11]利用高分辨率扫描电子显微镜在 $\text{PbTiO}_3/\text{SrTiO}_3$ (PTO/STO) 多层膜结构中的 PbTiO_3 (PTO) 层观察到了偶极子形成的手性涡旋畴结构和偶极波; Das 等^[7]通过施加不同的外延约束, 同时在室温条件下对 $\text{SrTiO}_3/\text{PbTiO}_3/\text{SrTiO}_3$ (STO/PTO/STO) 三明治结构进行模拟, 发现其中 PTO 层中存在极性斯格明子结构. 理论上, Ginzburg-Landau-Devonshire (GLD) 理论被用于建立铁电拓扑畴结构的唯象模型^[12]; 而 Zhong 等^[13]提出的有效哈密顿量方法是对铁电材料的能量进行建模的微观理论, 原则上也可以用于铁电畴的模拟; 最后, 基于第一性原理的从头算方法 (如密度泛函理论) 能构建研究铁电畴结构更加精细、复杂的模型, 但可能不适合对大尺度结构的模拟. 更具体地讲, 在对形成铁电畴的相关能量进行建模之后, 可以通过相场模拟、分子动力学模拟或蒙特卡罗模拟在不同尺度下研究铁电拓扑畴结构的静态和动态性质^[14,15]. 例如, 姜志军等^[16]通过密度泛函理论和

* 国家自然科学基金 (批准号: 11974268, 12111530061) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: dawei.wang@xjtu.edu.cn

蒙特卡罗模拟发现了BaTiO₃/BaZrO₃超晶格结构中涡旋和反涡旋的复杂构型, Wojdel和Íñiguez^[17]通过第一性原理计算和蒙特卡罗模拟研究了PTO材料在相变过程中铁电畴结构的动态性质.

如何通过计算、模拟在较大尺度上获得相对稳定而复杂的畴结构能够帮助理解或验证实验中所观察到的结构, 并可以对如何进行结构调控提供一定的指导, 因而是一个值得探索的问题. 在我们的工作中多使用有效哈密顿量方法对钙钛矿铁电材料进行建模并提供能量项^[13,18], 用于蒙特卡罗方法进行模拟, 来获得不同温度下的偶极子构型. 但是值得注意的是, 蒙特卡罗模拟通常到达系统的基态(全局能量最低的状态), 而铁电拓扑畴结构往往出现在系统的亚稳态^[19]. 通常情况下, 这是蒙特卡罗模拟的一个优势, 但在对铁电畴结构进行模拟的过程中反而是一个遗憾, 因为相应的模拟不容易停在亚稳态. 通过研究发现, 可以借鉴布朗方程方法弥补蒙特卡罗模拟方法的不足之处.

布朗方程是微磁模拟中研究磁化强度的一种方法, 是Brown^[20,21]于1940年首先发展出的一组方程, 并将其用于磁饱和的研究中. 布朗方程通过最小化磁性系统的总能量得到系统能量的极小值点, 但往往不一定是最小值, 因而经常陷入亚稳态结构^[22], 这也是后期微磁模拟研究常使用Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程^[23], 而不是布朗方程的主要原因. 然而, 根据布朗方程经常可以得到系统亚稳态这个特点, 本研究将其引入对铁电材料的模拟中, 结合系统的有效哈密顿量, 发展了寻找铁电材料中电偶极子拓扑畴结构的一个新方法. 具体说来, 本文将以周期性的超胞系统(包括BTO块体、PTO块体和STO/PTO/STO夹心三明治结构)为研究对象, 展示利用布朗方程研究铁电畴结构的具体做法和一些有趣的畴结构. 本文首先利用布朗方程研究了BTO块体和PTO块体的偶极子极化的空间构型和宏观极化, 验证了这一方法的可行性与正确性, 进而将此方法应用于STO/PTO/STO系统的拓扑畴模拟中, 在PTO层中发现了多种拓扑畴结构, 并与实验中观察到的拓扑畴结构进行了对照.

2 布朗方程

在微磁模拟中, 布朗方程是通过最小化系统能量来确定磁化矢量场稳定平衡态分布的一种方法.

磁性系统的总能量可以表示为

$$w = w_x + w_a + w_m + w_H, \quad (1)$$

式中, 右端各项分别为铁磁交换能、各向异性能、自静磁能和塞曼能^[24]. 对于其他可能存在的能量项, 如磁致伸缩能^[25], 亦可包含在内. 对(1)式求变分, 并根据变分结果为零(即 $\delta w = 0$)的条件即可获得布朗方程, 如下式所示:

$$\mathbf{m} \times \left(C \nabla^2 \mathbf{m} + M_s \mathbf{H} - \frac{\partial w_a}{\partial \mathbf{m}} \right) = 0, \quad (2)$$

具体推导可见文献^[22]. 其中, \mathbf{m} , C , w_a 分别是单位磁化矢量、铁磁交换能系数和各向异性能量密度. M_s 为饱和磁化强度或自发磁化强度, 通常是一个只和温度有关的常量. \mathbf{H} 是自静磁场 \mathbf{H}' 和外界场 \mathbf{H}_a 之和, 即 $\mathbf{H} = \mathbf{H}' + \mathbf{H}_a$. (2)式可重写为

$$\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} = 0, \quad (3)$$

$\mathbf{M} = \mathbf{m} M_s$ 表示磁化强度, 而 $\mathbf{H}_{\text{eff}} = \frac{C}{M_s} \nabla^2 \mathbf{m} + \mathbf{H} - \frac{1}{M_s} \frac{\partial w_a}{\partial \mathbf{m}}$ 可视为总的有效场. (2)式和(3)式说明当系统处于平衡态时, 扭矩处处为零, 并且磁化矢量和有效场平行.

在微磁模拟中, 布朗方程可用于研究磁性系统中的各种磁结构, 如磁畴、磁壁以及磁涡旋等^[22]. 除此之外, 通过能量最小化, 布朗方程还揭示了磁饱和定律 $M/M_s = 1 - \text{const}/H^{n/2}$ ($n = 1, 2, 3, \dots$)中分数幂次项 $1/H^{n/2}$ ($n = 1, 3, \dots$)的起源, 事实上, 这也是布朗方程最初的应用^[20,21]. 在早期微磁模拟中, 经常通过求解布朗方程得到微磁系统在稳定状态下的磁化矢量场构型. 需要指出的是, 通过求解布朗方程得到的解对应于系统能量的极值点, 得到的结果经常是系统的亚稳态, 且只能研究系统的静态性质. 而且由于布朗方程是非线性的, 对其求解也比较困难. 因而在微磁模拟中, 布朗方程逐渐被LLG方程取代^[24,26]. 然而, 从另一个角度而言, 由于很多畴结构往往是在系统能量处于亚稳态时出现, 因而利用布朗方程的特点, 尝试获得系统的亚稳态, 反而具有一定的优势. 受此启发, 本研究通过最小化钙钛矿铁电材料的有效哈密顿量, 推导出了铁电系统中的布朗方程, 并根据此方程寻找铁电材料中的铁电畴结构, 特别是有意思的拓扑结构.

2.1 铁电系统中的布朗方程

Zhong等^[13]基于软模理论, 以铁电材料内的局域模为基础, 推导出了铁电晶体中简单钙钛矿材

料的有效哈密顿量表达式, 为五部分能量之和:

$$E_{\text{tot}} = E_{\text{self}}(\mathbf{u}) + E_{\text{dpl}}(\mathbf{u}) + E_{\text{short}}(\mathbf{u}) + E_{\text{elas}}(\boldsymbol{\eta}) + E_{\text{int}}(\mathbf{u}, \boldsymbol{\eta}), \quad (4)$$

式中右端各项分别为局域模自能、偶极-偶极长程相互作用能、软模间的短程相互作用能、弹性能以及局域模和应变之间的相互作用能. 自变量 \mathbf{u} 为局域软模振幅, $\boldsymbol{\eta}$ 表示应变张量. 局域软模 \mathbf{u} 和偶极子极化为线性关系^[13], 因而可以将 \mathbf{u} 视为偶极子的极化矢量. 对 (4) 式变分并令变分结果为零, 获得的方程即为布朗方程, 求解布朗方程即可得到系统的偶极子构型. 值得指出的是, 在用有效哈密顿量方法研究钙钛矿系统时发现, 偶极-偶极长程相互作用非常重要^[13,27].

本研究中, 为了简化方程, 暂不考虑应变这一自由度, 并且仅考虑最近邻偶极子之间的相互作用. 因而有效哈密顿量包括自能项、长程偶极-偶极相互作用和短程相互作用三部分能量项, 如下式所示:

$$\begin{aligned} E_{\text{tot}} &\approx E_{\text{self}}(\mathbf{u}) + E_{\text{dpl}}(\mathbf{u}) + E_{\text{short}}(\mathbf{u}) \\ &= \sum_i [\kappa_2 u_i^2 + \alpha u_i^4 + \gamma(u_{i,x}^2 u_{i,y}^2 + u_{i,y}^2 u_{i,z}^2 \\ &\quad + u_{i,z}^2 u_{i,x}^2)] + \frac{2Z^*2}{a_0 \varepsilon_\infty} \sum_{ij,\alpha\beta} Q_{ij,\alpha\beta} u_{i,\alpha} u_{j,\beta} \\ &\quad + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \sum_{\alpha\beta} J_{ij,\alpha\beta} u_{i,\alpha} u_{j,\beta}, \end{aligned} \quad (5)$$

其中, κ_2 , α , γ , Z^* , a_0 , ε_∞ 为有效哈密顿量的参数. κ_2 , α , γ 是和自能项有关的参数, 对于立方结构, 由于对称性, 自能项中只包含偶极子极化矢量 \mathbf{u} 的偶数次方项; Z^* , a_0 , ε_∞ 是和长程偶极-偶极相互作用能有关的参数, Z^* 是玻恩有效电荷, ε_∞ 是材料的光介电常数, a_0 是晶体的晶格常数. $Q_{ij,\alpha\beta}$, $J_{ij,\alpha\beta}$ 分别是偶极子-偶极子相互作用矩阵和短程相互作用矩阵的矩阵元, 具体表达式详见文献^[13,28], i, j 表示偶极子序号, α, β 表示偶极子极化矢量的笛卡尔坐标方向. 上述参数和矩阵可以通过第一性原理计算等确定, 在研究中可被视为常数.

根据 (5) 式进行推导即可得到铁电系统中的布朗方程:

$$\begin{aligned} f(u_{i,\alpha}) &= \delta E_{\text{tot}} / \delta u_{i,\alpha} \\ &= [2\kappa_2 u_{i,\alpha} + 4\alpha u_i^2 u_{i,\alpha} + 2\gamma u_{i,\alpha} (u_i^2 - u_{i,\alpha}^2)] \\ &\quad + \frac{2Z^*2}{a_0 \varepsilon_\infty} \sum_{j,\beta} Q_{ij,\alpha\beta} u_{j,\beta} + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i,\beta} J_{ij,\alpha\beta} u_{j,\beta}. \end{aligned} \quad (6)$$

(6) 式中, 令 $f(u_{i,\alpha}) = \delta E_{\text{tot}} / \delta u_{i,\alpha} = 0$, 得到铁电系统关于偶极子极化矢量 \mathbf{u} 的布朗方程, 进而通过数值方法进行求解, 便可得到铁电系统偶极子构型的亚稳态. 需要指出的是, 布朗方程可能会陷入某些不稳定的平衡状态, 对应能量极大值情况. 和微磁模拟类似, 需要通过多次模拟 (如通过从不同的初始状态开始进行模拟) 获得不同的电偶极子构型, 并比较不同构型之间的能量, 以剔除极大值点. 或者可以对获得的电偶极子构型进行一些微扰 (如改变一些偶极子的方向), 计算能量是否降低, 从而分析所处的状态是否是一个能量极大的状态. (6) 式表示的布朗方程为寻找潜在的铁电畴结构提供了理论依据.

作为对比, 相场模拟是另一个常用来进行电畴模拟的方法. 与布朗方程类似, 也能用于对大的铁电系统进行建模并进行数值模拟, 但各有侧重. 相场模型基于 Ginzburg-Landau (GL) 自由能泛函^[14], 可用于描述铁电系统中畴结构随应力、温度等变量的动态演化过程^[29]. 然而, GL 自由能泛函是一个唯象公式, 需要通过实验确定诸多热力学和动力学参数, 同时, 相场模拟还存在计算收敛性和稳定性的问题^[15,30]. 这里提出的布朗方程可以使用 GL 自由能 (需要进行适当的离散化) 或有效哈密顿量来提供能量项, 特别是有效哈密顿量的参数可通过第一性原理计算直接确定. 布朗方程的不足是其得到的是系统极化的稳态或亚稳态结构, 无法描述系统的动态性质.

2.2 布朗方程的数值求解

为了快速、准确地求解用于铁电材料的布朗方程, 我们尝试了牛顿法、雅可比迭代法和高斯迭代法等多种方法, 发现采用 Schröder 迭代法^[31] 求解布朗方程能够获得比较好的效果和计算效率.

Schröder 迭代法是一种用于求解非线性方程的数值求根方法. 一般地, 若要求函数 $F(x) = 0$ 的根, Schröder 迭代格式为

$$x_{m,k+1} = x_{m,k} + \sum_{r=1}^{r=m-1} (-1)^r \times \frac{F(x_{m,k})^r}{r!} (F^{-1})^{(r)} F(x_{m,k}), \quad (7)$$

其中, F^{-1} 是 F 的反函数, m 为迭代格式的阶数, k 为迭代步数. 理论上, Schröder 迭代法存在不同

阶数的迭代格式, 当阶数 m 为 2 时, Schröder 迭代法退化成了牛顿法; 当阶数 m 大于等于 2 时, Schröder 迭代具有 m 阶收敛速率^[31]; 当 m 大于 2 且为奇数时, Schröder 迭代法具有全局和单调的收敛性^[32], 能够很好地到达函数的零点. 这里使用的是五阶 Schröder 迭代格式, 在此基础上, 还引入了逐次超松弛技术^[33], 赋予 Schröder 迭代法权重, 以改善收敛效果. 对于所要求解的布朗方程 $f(u_{i,\alpha}) = 0$ ((6) 式), 赋权后的五阶 Schröder 迭代格式如下:

$$u_{i,\alpha}^{k+1} = u_{i,\alpha}^k - w \frac{p(1 - 2C_2p + C_3p^2)}{1 - 3C_2p + (2C_3 + C_2^2)p^2 - C_4p^3}. \quad (8)$$

注意 (8) 式是 (7) 式取 $m = 5$, 并通分化简后的表达式. $u_{i,\alpha}^k$ 表示格点 i 处偶极子沿 α 方向的极化在第 k 次迭代后的结果. 在具体的计算中, 初始值 $u_{i,\alpha}^0$ 被设置为 $(-1, 1)$ 之间的随机数. (8) 式中, $p = f/f'$, $C_v = f^{(v)}/v!f'$, $v = 2, 3 \dots$, f 为函数式 (6), $f^{(v)}$ 为布朗方程的 v 阶导, k 表示迭代步数. w 为权重, 用于调节迭代的收敛速率. 为确保迭代收敛, 应根据不同的研究系统取适当的权重值. 注意公式中还需要 $f(u_{i,\alpha})$ 对 $u_{i,\alpha}$ 的各阶导数:

$$f' = \frac{\delta f}{\delta u_{i,\alpha}} = 2\kappa_2 + 4\alpha(2u_{i,\alpha}^2 + u_i^2) + 2\gamma(u_i^2 - u_{i,\alpha}^2) + 2\frac{Z^{*2}}{a}Q_{ii,\alpha\alpha}, \quad (9)$$

$$f'' = \frac{\delta^2 f}{\delta u_{i,\alpha}^2} = 24\alpha u_{i,\alpha}, \quad (10)$$

$$f''' = \frac{\delta^3 f}{\delta u_{i,\alpha}^3} = 24\alpha, \quad (11)$$

$$f'''' = \frac{\delta^4 f}{\delta u_{i,\alpha}^4} = 0. \quad (12)$$

将上述各阶导数表达式代入 p , C_v 的表达式, 结合 (8) 式, 即可得到布朗方程的具体迭代格式.

计算中还定义了两个判定迭代收敛的条件作为终止计算的判则:

$$\left\{ \sum_{i,\alpha} \left[(u_{i,\alpha}^{k+1})^2 - (u_{i,\alpha}^k)^2 \right] \right\}^{1/2} < C_1, \quad (13)$$

$$\sum_{i,\alpha} |f(u_{i,\alpha})| < C_2, \quad (14)$$

其中, 判则 1((13) 式) 表示所有格点前后两次迭代

偶极子极化的差值之和小于常数 C_1 . 在模拟中, $u_{i,\alpha}$ 的数量级为 10^{-2} , 考虑到格点个数, 取 $C_1 = 10^{-3}$, 已能保证迭代精度; 判则 2 ((14) 式) 表示各格点偶极子极化对应的布朗方程绝对值之和小于常数 C_2 , 研究取 $C_2 = 10^{-3}$, 用来检验迭代法得到的解是否满足布朗方程. 当迭代结果满足上述两个判则时, 视为迭代收敛, 该结果为布朗方程为零的解, 即铁电系统在稳定状态下的偶极子极化构型. 值得注意的是, 有效哈密顿量模型中, 由于偶极子之间的长程相互作用涉及整个系统, 计算时没有被截断, 这导致了 $\mathcal{O}(N^2)$ 繁重的计算量, 因此本研究利用 Ewald 求和方法提高长程偶极-偶极相互作用的计算效率^[28].

3 BTO 与 PTO 块体

为了验证布朗方程在铁电系统中的有效性, 首先利用布朗方程研究 BTO 和 PTO 块体. 研究中具有周期性边界条件的超胞结构, 超胞的每个格点上设置有一个电偶极子, 表示铁电体一个单胞的极化. 继而研究 STO/PTO/STO 夹心三明治结构, 探索其中可能出现的有趣偶极子构型. 对于这三种系统, 它们的有效哈密顿量参数由第一性原理计算得到, 本文使用的关于 BTO^[34], PTO^[35] 和 STO^[36] 的有效哈密顿量参数由 Nishimatsu 等获得.

3.1 BTO 块体

对于 $12 \times 12 \times 12$ 超胞 BTO 块体的模拟, Schröder 迭代中的权重取 $w = 0.5$, 迭代即可收敛. 重复进行模拟, 得到了多个偶极子的亚稳态构型, 而这些构型的宏观平均极化方向包括 $\langle 111 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 100 \rangle$ 三个方向, 如图 1 所示. 图中计算了单个偶极子和 $\langle 111 \rangle$ 方向的空间夹角, 当夹角小于 10° 时, 认为偶极子近似沿 $\langle 111 \rangle$ 方向, 从而统计了每种构型这一方向的偶极子的比例, 结果如表 1 所列. 不难发现, 大多数偶极子的局域极化都近似沿 $\langle 111 \rangle$ 的 8 个方向之一, 但由于偶极子沿 8 个不同 $\langle 111 \rangle$ 方向排列的个数分布不同, 系统的宏观极化出现了 $\langle 111 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 100 \rangle$ 三个方向.

图 1(a) 中, BTO 偶极子极化都近似沿同一 $\langle 111 \rangle$ 方向, 形成了沿 $\langle 111 \rangle$ 方向的单畴结构, 宏观极化沿 $\langle 111 \rangle$ 方向. 图 1(b) 和图 1(c) 中, 偶极子沿不同 $\langle 111 \rangle$ 方向排列, 形成了多个畴结构, 每个畴里

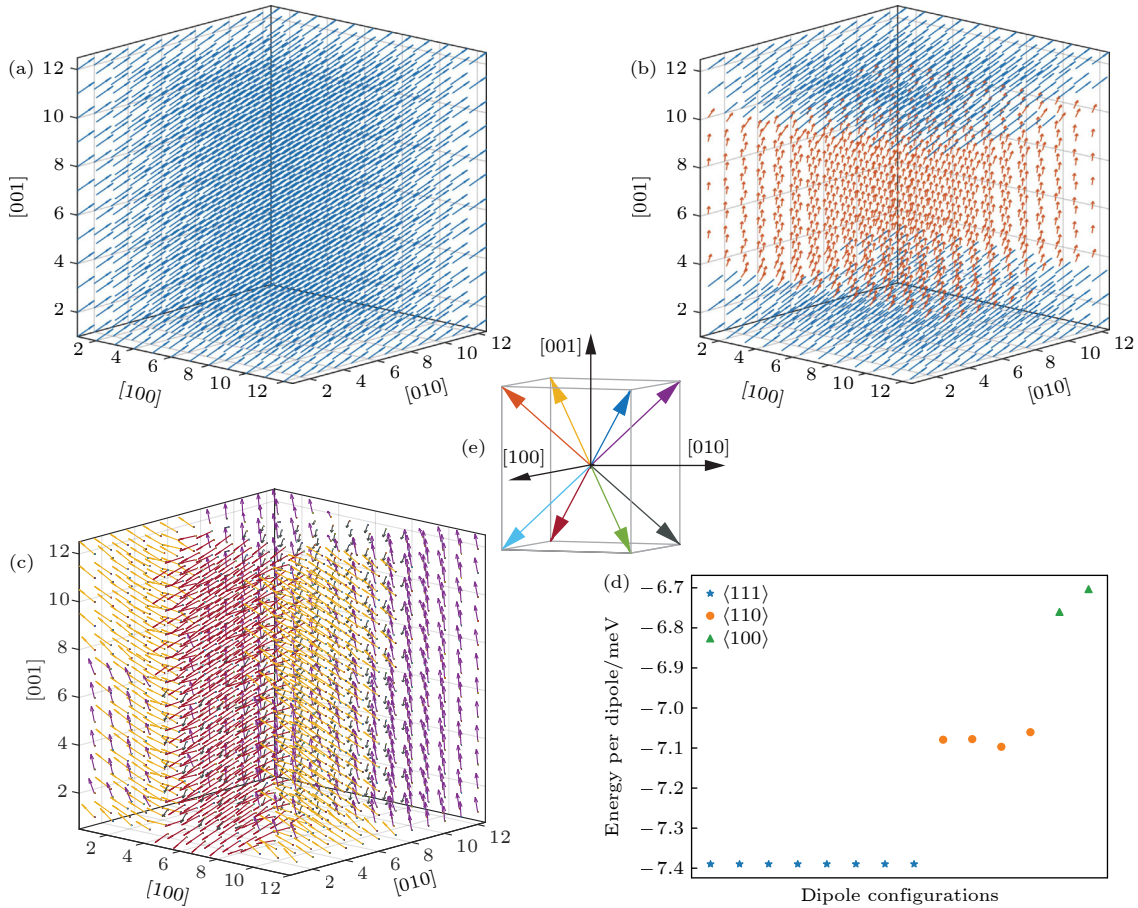


图 1 (a)–(c) 是 BTO 系统模拟得到的三种偶极子极化构型, 宏观极化分别沿 $\langle 111 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 100 \rangle$ 方向; (d) 计算得到的所有样本中偶极子构型能量和宏观极化方向的关系, 横轴表示不同次计算获得的结果, 纵轴表示每个偶极子的平均能量 (meV); (e) 说明了图 (a)–(c) 中箭头颜色表示的偶极子极化方向, 不同颜色的箭头表明偶极子极化方向处于不同的象限. 下节 PTO 块体的构型也沿用了图 (e) 表示的颜色方向

Fig. 1. (a)–(c) Three types of dipole polarization configurations in BTO simulation, where the macroscopic polarizations are along $\langle 111 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 100 \rangle$, respectively; (d) energy (per dipole) with respect to the calculated configurations obtained from simulations; (e) dipole polarization direction indicating the colors used by the arrows in panels (a)–(c). The colors shown in panel (e) are also used for PTO bulk in the next section.

的偶极子都一致沿某一个确定的 $\langle 111 \rangle$ 方向, 但宏观上平均极化表现不同. 图 1(b) 沿 $\langle 110 \rangle$ 方向, 图 1(c) 沿 $\langle 100 \rangle$ 方向. 宏观极化沿 $\langle 111 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 100 \rangle$ 方向, 对应的 BTO 单胞的平均自发极化分别为 0.19, 0.16, 0.12 C/m², 而实验值^[37] 约为 0.22, 0.19, 0.17 C/m², 模拟值和实验值基本一致. BTO 块体偶极子极

化的模拟结果可以通过八位点无序 (eight-site disorder) 模型解释^[38], 该模型在实验上已经被证实是合理的^[39]. 这一模型假设, 不论温度高低, 当 BTO 系统处于稳态时, 其内部 Ti 原子的位移都沿 $\langle 111 \rangle$ 方向, 考虑到 BTO 中偶极子的极化主要是由 Ti 原子的位移导致的, 故每一个偶极子的局域自发极化也沿 $\langle 111 \rangle$ 方向. 不同偶极子之间存在耦合 (包括近程和长程相互作用), 使偶极子极化方向趋于一致, 耦合强度随着温度的升高而减弱. 实验证实^[39], 从低温到高温, BTO 发生了从菱方相、斜方相、四方相再到立方相的结构相变, 对应的宏观自发极化方向分别为 $\langle 111 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 100 \rangle$, 当 BTO 处于立方相时, 宏观自发极化消失, 表现为顺电性; 低温时, BTO 内部偶极子之间的耦合最强, 偶极子

表 1 图 1(a)–(c) 所示构型中的近似沿 $\langle 111 \rangle$ 方向的偶极子数目

Table 1. The number of unit cell dipoles that are approximately along $\langle 111 \rangle$ direction for the configurations in Figs. 1(a)–(c), respectively.

宏观极化方向	$\langle 111 \rangle$	$\langle 110 \rangle$	$\langle 100 \rangle$
近似沿 $\langle 111 \rangle$ 方向的偶极子极化个数	1728	1536	1348
近似沿 $\langle 111 \rangle$ 方向的偶极子极化占比	100%	89%	78%

的局域极化都趋于同一个 $\langle 111 \rangle$ 方向, 从而宏观极化也表现为 $\langle 111 \rangle$ 方向. 随着温度的升高, 每经过一次相变, 偶极子之间的耦合减弱, 偶极子沿 $\langle 111 \rangle$ 方向的极化出现无序性, 即偶极子出现了沿不同 $\langle 111 \rangle$ 方向的分布, 从而导致了斜方相下沿 $\langle 110 \rangle$ 方向和四方相下沿 $\langle 100 \rangle$ 方向的宏观极化. 刘佳等^[40]通过基于有效哈密顿量的蒙特卡罗模拟也获得了类似的结果, 即低温下 $\langle 111 \rangle$ 方向偶极子占绝大多数.

本文利用布朗方程得到铁电系统的亚稳态, 包括了上述几种不同的宏观极化情况, 对应于 BTO 的菱方相、斜方相、四方相情形. 这是因为布朗方程的结果对应于系统能量的极小值, 由于系统能量往往有多个极小值, 从而系统的亚稳态不是唯一的, 可能会出现多种偶极子构型. 图 1(d) 是宏观极化沿 $\langle 111 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 100 \rangle$ 方向的偶极子构型的能量. 可以看到能量随 $\langle 111 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 100 \rangle$ 递增, 但差别不大, 都对应系统能量的极小值. 需要指出的是, 实验证实 BTO 在不同相下的能量差确实非常小^[41]. 本研究中得到的 BTO 极化构型和八位点无序模型预言的结果一致, 同时模拟结果验证了系统处于基态 (菱方相) 时能量最低且宏观极化沿 $\langle 111 \rangle$ 方向, 说明布朗方程能有效应用于铁电系统的模拟.

3.2 PTO 块体

对于 $12 \times 12 \times 12$ 超胞的 PTO 块进行同样的模拟, Schröder 迭代中的权重取 $w = 0.1$. 重复进行模拟, 得到了多个 PTO 偶极子极化构型. 模拟结果表明, 在所有偶极子构型中, 绝大多数 PTO 单胞的极化都近似沿 $\langle 111 \rangle$ 方向 (占比 98% 以上). 图 2 中, 宏观极化沿 $\langle 100 \rangle$ 方向, 但 99% 的偶极子的极化方向都沿 $\langle 111 \rangle$ 方向, 分析过程和 BTO 类似, 同样可以用八位点无序模型进行理解. 由于沿不同 $\langle 111 \rangle$ 方向的偶极子的分布, 导致 PTO 总体上沿 $\langle 100 \rangle$ 方向极化. 图 2 所示构型的平均自发极化为 0.10 C/m^2 , 这个结果和晶格保持立方相情况 ($a = b = c$) 的第一性原理计算结果基本一致^[42]. 需要注意的是, 在四方晶格的情况下 ($c/a \approx 1.05$), 由第一性原理计算出的理论值为 0.87 C/m^2 ^[43] 或 0.7 C/m^2 ^[42]. 而实验结果^[44] 也表明, 随着温度的降低, PTO 会变为四方相, 其自发极化沿 $\langle 100 \rangle$ 方向. 对图 2 的模拟结果分析也显示, 宏观极化确实沿

$\langle 100 \rangle$ 方向, 与实验结果符合. 与 BTO 类似, 在模拟中也得到了沿其他方向的宏观极化, 代表了其他类型的亚稳态结构, 能量和基态差别不大.

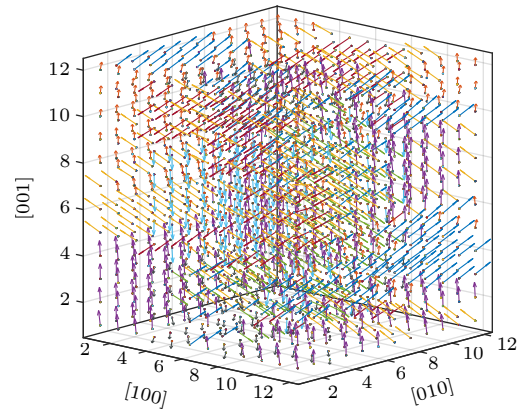


图 2 PTO 宏观极化沿 $\langle 100 \rangle$ 方向的偶极子构型

Fig. 2. The dipole configuration of PTO bulk whose the macroscopic polarization is along $\langle 100 \rangle$.

4 STO/PTO/STO 超晶格结构

STO/PTO 作为一种重要的人造超晶格材料, 近些年来成为一个研究热点, 由于其结构特征 (STO 不具有极化而 PTO 具有较大极化), PTO 层往往形成丰富的畴结构, 包括条带状畴、斯格明子、极性涡旋畴和极性反涡旋结构等^[5,7,45]. 在验证了布朗方程的有效性之后, 对沿 $[001]$ 方向交替的 STO/PTO/STO 三明治结构进行研究, 模拟了两种不同尺寸的体系, 分别是 $30 \times 30 \times 20$ 的 $\text{STO}_6/\text{PTO}_8/\text{STO}_6$ 超胞结构 (即沿 z 方向有 6 层 STO, 8 层 PTO, 6 层 STO) 和 $30 \times 30 \times 30$ 的 $\text{STO}_5/\text{PTO}_{20}/\text{STO}_5$ 超胞结构.

在进行计算机模拟时, 格点 i 处偶极子沿 α 方向的极化初始值 $u_{i,\alpha}^0$ 设置为 $(-1, 1)$ 之间的随机数; 由于 STO 是非铁电材料, 无自发极化, 因此将 STO 格点的极化固定为零. 在数值求解 (6) 式时发现, 对于大体系的 STO/PTO 结构, 迭代结果波动较大, 有时会出现异常大的偶极子, 迭代结果容易陷入包含异常大的偶极子的构型中, 从而导致迭代一直难以收敛. 为避免此情况, 研究采用了权重自适应技巧, 也就是对于如 $u_{k+1} = u_k - wF(u_k)$ 的 Schröder 迭代形式, 权重 w 取值为常数 0.2; 然而, 当 $u_{k+1} > 1$ 时 (u_{k+1} 一般为 10^{-2} 数量级), 则重新设置权重为 $0.2/[1 + 1000F(u_k)]$, 对 u_{k+1} 进行缩放, 以避免出现异常大偶极子, 确保迭代收敛.

4.1 $\text{STO}_6/\text{PTO}_8/\text{STO}_6$ 体系

图 3(a) 给出了 $\text{STO}_6/\text{PTO}_8/\text{STO}_6$ 中形成的电偶极子三维构型, 红色箭头和蓝色箭头分别表示极化沿 [001] 正方向和负方向, 中间显示偶极子部分为 8 层 PTO. 观察发现, 在 PTO 的纵切面常常出现涡旋畴和周期性条带状畴. 图 3(b) 中, 黄色圆表示涡旋畴结构, 偶极子整体表现为沿 [010] 方向交替排列的周期性条带状畴结构. 为观察到更加丰富的偶极子构型, 进而模拟了 $30 \times 30 \times 30$ 的 $\text{STO}_5/\text{PTO}_{20}/\text{STO}_5$ 超胞结构.

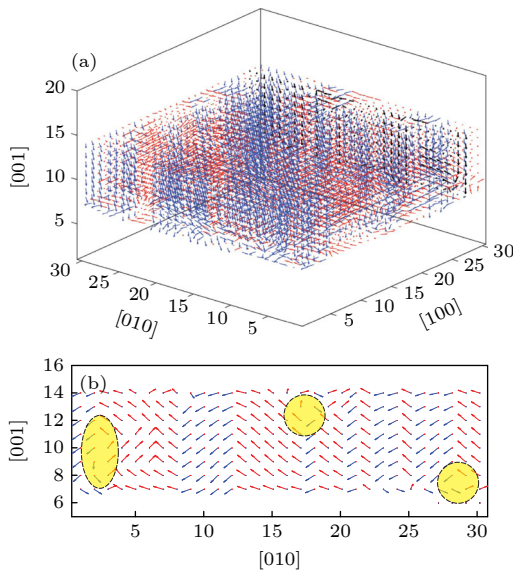


图 3 (a) $\text{STO}_6/\text{PTO}_8/\text{STO}_6$ 体系模拟结果, 红色箭头和蓝色箭头分别表示极化沿 [001] 正方向和负方向; (b) 图 (a) 中沿 [100] 方向第 28 层偶极子平面投影图, 即图 (a) 黑色纵切面, 黄色圆表示涡旋畴结构

Fig. 3. (a) Simulation results of $\text{STO}_6/\text{PTO}_8/\text{STO}_6$ system, where red arrows and blue arrows indicate that the polarization is along the positive and negative directions of [001] respectively; (b) projection of dipoles in the 28th (100) plane along the [100] direction (the black arrows in panel (a)). The yellow circles show the vortex domain structures.

4.2 $\text{STO}_5/\text{PTO}_{20}/\text{STO}_5$ 体系

图 4(a) 是 $\text{STO}_5/\text{PTO}_{20}/\text{STO}_5$ 超胞结构的偶极子三维构型图. 对比图 3 和图 4 两种体系, 发现随着 PTO 层厚度的增加, 周期性的条带状畴越发明. 在 (100) 和 (010) 面上, PTO 层出现了周期性条带状畴结构 (图 4(b) 红色折线) 和涡旋型拓扑畴结构 (图 4(b) 黄色圆). 图 4(c) 是图 4(b) 黄色圆的放大图, 图 4(c) 显示的涡旋畴不局限于某一层,

而是沿 [010] 方向表现为多层的三维结构. 在 PTO-STO 边界处, 极化沿 [001] 方向的分量变小, 而且涡旋畴常常出现在 PTO 层的边界部分, 这是由 STO 诱发出的退极化场导致的. 在退极化场的作用下, PTO 层顶部和底部的偶极子极化沿 [001] 方向的分量变小, 较易出现涡旋畴结构; 在 PTO 层内部, 条带状畴结构的形成减弱了退极化场的影响^[46].

值得注意的是, 在沿 [010] 方向, 观察到了 180° 的偶极位错 (图 4(d) 中 A, B), 和路璐等^[11] 在 PTO/STO 薄膜材料中发现的偶极位错 (文献 [11] 中的图 4) 相类似. 不同的是, 本研究模拟出现的偶极位错发生在靠近 STO 的 PTO 底部, 而文献 [11] 中观察到的偶极位错位于 PTO 中间层. 图 4(d) 中, 观察到了两种偶极位错构型 A 和 B, 红色圆圈内偶极子的极化沿 z 方向极小, 接近面内极化; 在红色圆圈内的偶极子周围, 分别形成了指向半圆圆心的极化排列 (区域 A) 和背离圆心的极化排列 (区域 B). 区域 A, B 所示的极化构型和 180° 偶极位错非常类似, 常见于磁性体系^[47], 在铁电体中少有被观察到^[11]. 图 4(d) 所示的模拟结果进一步证实了偶极位错在铁电体中的存在.

图 5(a) 是沿 [001] 方向间隔绘制的 $\text{STO}_5/\text{PTO}_{20}/\text{STO}_5$ 偶极子极化三维构型图. 大体而言, 在 PTO 中间部分, 偶极子取向比较规则. 如图 5(b) 和图 5(c) 所示, PTO 层偶极子沿 [001] 方向发生了无序-有序-无序的变化. 在 PTO 层内部, 偶极子在 (001) 面上的投影都有序地沿同一方向 (图 5(b)); 在 PTO 和 STO 交界层, 偶极子在 (001) 面上的投影呈现出许多有意思的结构 (图 5(c)), 形成了多个畴区域.

图 5(c) 中标注了三个典型的拓扑结构, 指出了多种畴和畴壁结构, 包括向两侧张开的畴结构 (红色区域)、偶极波 (蓝色曲线) 和伴随偶极波的畴结构 (黄色区域). 图 5(c) 的红色区域中, 偶极子沿中间向两侧张开, 一侧偶极子指向 [001] 正方向, 另一侧偶极子指向 $[00\bar{1}]$ 方向, 形成 90° 畴和畴壁结构. 仔细观察, 可以发现类似结构在这幅图中多次出现. 与图 5(c) 红色区域表示的向两侧张开的畴结构相反的是, 图 5(c) 蓝色曲线附近, 偶极子由两侧向中间汇聚, 其流动方向是连续变化的, 形成了偶极波. 同时, 在偶极波附近, 存在中心汇聚型的畴结构 (图 5(c) 黄色区域), 类似的结构在 $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$

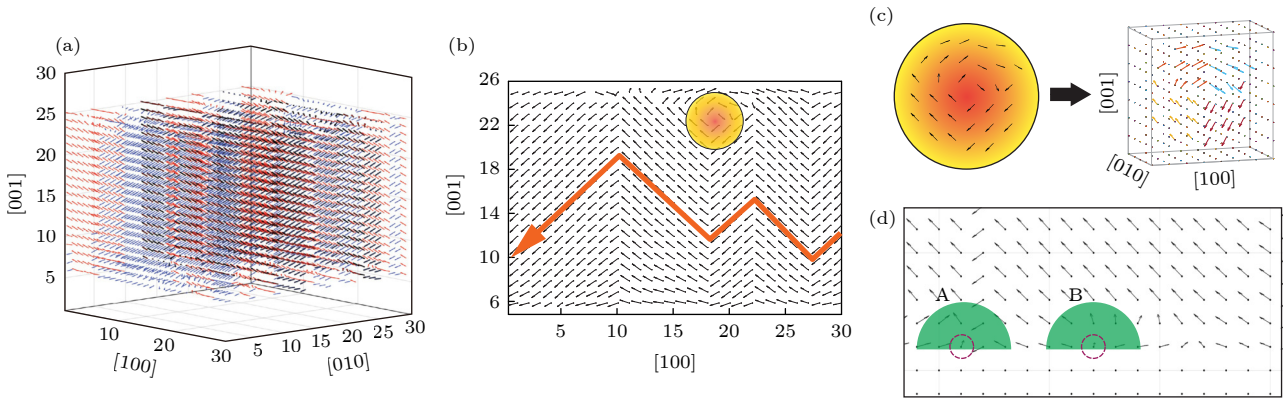


图4 STO₅/PTO₂₀/STO₅体系模拟结果 (a) STO/PTO/STO偶极子极化构型图, 为使图像更加清晰, 沿[010]方向每隔四层画一层, 红色箭头和蓝色箭头分别表示极化沿[001]正方向和负方向; (b)图(a)中沿[010]方向的第25层偶极子的纵切面投影图; (c)图(b)中黄色区域的放大图, 包括其沿[010]方向的投影图和三维结构, 该涡旋畴沿[010]方向呈柱状; (d)位于图(a)中沿[010]方向的第13层偶极子纵切面底部; 在图(a)中, 图(b)–(d)表示结构的所在平面都用黑色箭头标注

Fig. 4. Simulation results of STO₅/PTO₂₀/STO₅ system: (a) STO/PTO/STO dipole polarization configuration, drawing every 5th layers along the [010] direction in order to make the figure clearer; (b) the projected dipole polarization of the 25th layer along the [010] direction; (c) detailed view of the yellow area in panel (b), the vortex domain is cylindrical along the [010] direction; (d) the dipole configuration of the 13th layer along the [010] direction. The planes shown in panels (b)–(d) are marked by black arrows in panel (a).

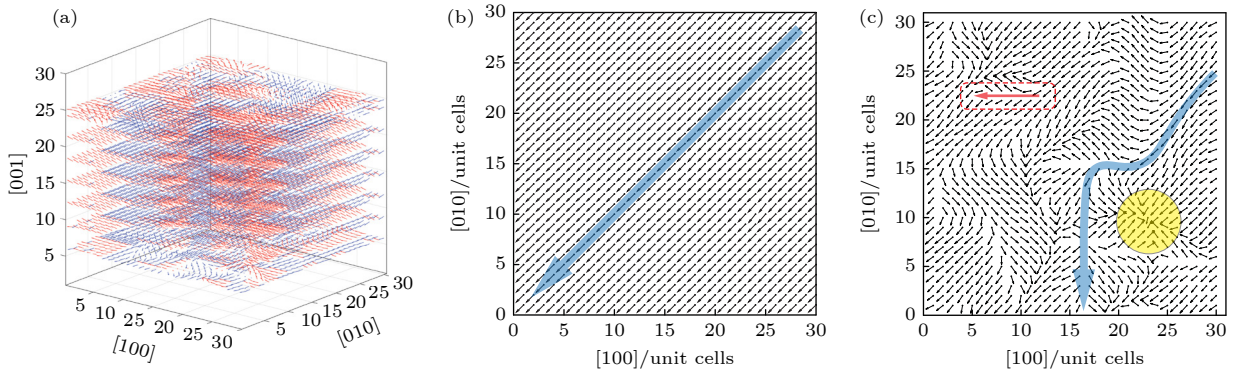


图5 STO/PTO/STO模拟结果 (a) STO/PTO/STO偶极子极化构型示例(和图4(a)是同一个三维图), 沿[001]方向每隔三层画出一层中的偶极子, 同时画出PTO和STO交界层; (b)PTO中间层, 即沿[001]方向第15层的投影图; (c)PTO底部和STO交界层沿[001]方向的投影图

Fig. 5. (a) Dipole polarization configuration of STO/PTO/STO system, which is the configuration as Fig. 4(a), drawing every 4th layer along the [001] direction in order to make the figure clearer, the interface layer between PTO and STO is also shown; (b) projection of the middle PTO layer along the [001] direction; (c) projection of the bottom interface PTO layer along [001].

薄膜^[48]和PTO/STO薄膜^[11]亦被观察到. 不同的是, 在偶极波附近, 实验^[11,48]发现是气泡型的涡旋畴结构, 涡旋畴中心处的偶极子极化几乎指向面外, 而本研究得到的则是中心汇聚型畴结构. 此外, 本文得到的结构位于(001)面, 而实验^[11,48]发现的结构位于(100)面. 图5(c)表示的是PTO层底部的畴结构, PTO层顶部的畴结构与其相类似, 故不再做讨论.

5 结论

可用于铁电系统研究的布朗方程, 是一种获得

电偶极子低能量构型的一种方法. 这一方法独立于目前已知的方法, 为寻找复杂铁电畴结构提供了一个新的工具. 将该方法应用于STO/PTO/STO超晶格系统的模拟中, 获得了多种复杂畴结构, 包括周期性条带状畴结构、涡旋型拓扑畴结构等. 值得指出的是, 钙钛矿薄膜的生长过程是一个极强的动态过程, 所形成的薄膜中的电偶极子构型通常会处于亚稳态^[49], 其中的有些构型会随温度降低而冻结在体系内部, 最终被实验观察到. 布朗方程容易模拟出现亚稳态构型的特点反而适用于模拟这一类远离非平衡态生长过程所得到的电偶极子构型, 该方法本身的短处反而成为一个特殊的优势.

需要说明的是,文献 [11] 指出长程相互作用和压缩应力都对偶极波和偶极位错的形成有重要贡献. 而在本工作中,出于两个考虑暂时忽略了应变自由度. 1) 忽略应变的影响,可以减少系统的自由度,简化分析. 加入应变的布朗方程中将有两类非常不同的变量,不管是在理论分析上还是数值模拟中都会造成一定的困难. 值得注意的是,对于 BTO 和 PTO 块体,在目前不含有应变的模拟结果中,所得出的宏观性质(特别是自发极化)和实验是基本符合的. 2) 在薄膜中,尤其是外延生长的特别薄的薄膜中,衬底在很大程度上将薄膜的应变固定了下来,因而应变的重要性有所下降. 由于有效哈密顿量中加入了电偶极子与应变的耦合,所以理论上可以引入应变作为新的自由度,从而得到更一般的布朗方程,这也是我们未来进行尝试的一个重要课题.

此外,在计算长程相互作用时是否对作用距离进行截断^[50]、系统中是否有缺陷或掺杂原子可能都会对电偶极子畴的构型造成影响. 对于这些因素,利用布朗方程可以在未来进一步探索,从而发现、理解可能对拓扑畴进行调控的机制. 总之,本文将微磁理论中的布朗方程用于铁电体畴结构的研究,发展了一个独立的理论方法,为研究铁电畴结构以及其他性质提供了一个新的途径. 本文首先在 BTO 和 PTO 体系中验证了这一方法的有效性,然后预测了 STO/PTO 超晶格多种复杂的畴结构. 对该方法进一步拓展,可为理解和预测铁电系统中复杂的畴构型及其潜在应用提供帮助.

参考文献

- [1] Seidel J, Ramesh R, Scott J, Catalan G 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 119
- [2] Nataf G F, Guennou M, Gregg J M, Meier D, Hlinka J, Salje E K H, Kreisel J 2020 *Nat. Rev. Phys.* **2** 634
- [3] Scott J 2016 *Ferroelectrics* **503** 117
- [4] Tan C B, Zhong X L, Wang J B 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 127702 (in Chinese) [谭丛兵, 钟向丽, 王金斌 2020 物理学报 **69** 127702]
- [5] Lu X M, Huang F Z, Zhu J S 2020 *Acta Phys. Sin.* **69**
- [6] Tian G, Yang W, Chen D, Fan Z, Hou Z, Alexe M, Gao X 2019 *Natl. Sci. Rev.* **6** 684
- [7] Das S, Tang Y L, Hong Z, Gonçalves M A P, McCarter M R, Klewe C, Nguyen K X, Gómez-Ortiz F, Shafer P, Arenholz E, Stoica V A, Hsu S L, Wang B, Ophus C, Liu J F, Nelson C T, Saremi S, Prasad B, Mei A B, Schlom D G, Íñiguez J, García-Fernández P, Muller D A, Chen L Q, Junquera J, Martin L W, Ramesh R 2019 *Nature* **568** 368
- [8] Huang J, Tan P, Wang F, Li B 2022 *Crystals* **12** 786
- [9] Das S, Ghosh A, McCarter M R, Hsu S L, Tang Y L, Damodaran A R, Ramesh R, Martin L W 2018 *APL Mater.* **6** 100901
- [10] Seidel J 2016 *Topological Structures in Ferroic Materials*, volume 228 of *Springer Series in Materials Science* (Cham: Springer International Publishing)
- [11] Lu L, Nahas Y, Liu M, Du H, Jiang Z, Ren S, Wang D, Jin L, Prokhorenko S, Jia C L, Bellaiche L 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 177601
- [12] Marton P, Rychetsky I, Hlinka J 2010 *Phys. Rev. B* **81** 144125
- [13] Zhong W, Vanderbilt D, Rabe K M 1995 *Phys. Rev. B* **52** 6301
- [14] Chen L Q 2008 *J. Am. Ceram. Soc.* **91** 1835
- [15] Liu J, Chen W, Wang B, Zheng Y 2014 *Materials* **7** 6502
- [16] Jiang Z, Xu B, Li F, Wang D, Jia C L 2015 *Phys. Rev. B* **91** 014105
- [17] Wojdel J C, Íñiguez J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 247603
- [18] Zhong W, Vanderbilt D, Rabe K M 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1861
- [19] Liu Y, Tang Y L, Zhu Y L, Wang W Y, Ma X L 2016 *Adv. Mater. Interfaces* **3** 1600342
- [20] Brown W F 1941 *Phys. Rev.* **60** 139
- [21] Brown W F 1940 *Phys. Rev.* **58** 736
- [22] Aharoni A, et al. 2000 *Introduction to the Theory of Ferromagnetism* (Vol. 109) (Clarendon Press)
- [23] García-Palacios J L, Lázaro F J 1998 *Phys. Rev. B* **58** 14937
- [24] Kumar D, Adeyeye A O 2017 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** 343001
- [25] Zhu B, Lo C C H, Lee S J, Jiles D C 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 7009
- [26] Shen K, Tatara G, Wu M W 2011 *Phys. Rev. B* **83** 085203
- [27] Li B L, Liu X P, Fang F, Zhu J L, Liu J M 2006 *Phys. Rev. B* **73** 014107
- [28] Wang D, Liu J, Zhang J, Raza S, Chen X, Jia C L 2019 *Comput. Mater. Sci.* **162** 314
- [29] Hong Z, Damodaran A R, Xue F, Hsu S L, Britson J, Yadav A K, Nelson C T, Wang J J, Scott J F, Martin L W, et al. 2017 *Nano Lett.* **17** 2246
- [30] Chen L Q, Zhao Y 2022 *Prog. Mater. Sci.* **124** 100868
- [31] Petković M, Petković L, Herceg ff 2010 *J. Comput. Appl. Math.* **233** 1755
- [32] Sugiura H, Hasegawa T 2019 *J. Comput. Appl. Math.* **358** 136
- [33] Huang Y Q, Shu S, Chen Y P 2009 *Numerical Computation Method* (Beijing: Science Press) (in Chinese) [黄云清, 舒适, 陈艳萍 2009 数值计算方法 (北京: 科学出版社)]
- [34] Nishimatsu T, Iwamoto M, Kawazoe Y, Waghmare U V 2010 *Phys. Rev. B* **82** 134106
- [35] Nishimatsu T, Aoyagi K, Kiguchi T, J Konno T, Kawazoe Y, Funakubo H, Kumar A, V Waghmare U 2012 *J. Phys. Soc. Jpn.* **81** 124702
- [36] Nishimatsu T, Grünebohm A, Waghmare U V, Kubo M 2016 *J. Phys. Soc. Jpn.* **85** 114714
- [37] Kwei G H, Lawson A C, Billinge S J L, Cheong S W 1993 *J. Phys. Chem.* **97** 2368
- [38] Bersuker I B 1966 *Phys. Lett.* **20** 589
- [39] Ravel B, Stern E A, Vedrinskii R I, Kraizman V 1998 *Ferroelectrics* **206** 407
- [40] Liu J, Jin L, Jiang Z, Liu L, Himanen L, Wei J, Zhang N, Wang D, Jia C L 2018 *J. Chem. Phys.* **149** 244122
- [41] Tinte S, Stachiotti M, Sepiarsky M, Migoni R, Rodriguez C 1999 *J. Phys.: Condens. Matter* **11** 9679
- [42] Zhang F, Zhang J, Jing H, Li Z, Wang D, Jia C L 2022 *Phys.*

- Rev. B* **105** 024106
- [43] Tadmor E, Waghmare U, Smith G, Kaxiras E 2002 *Acta Mater.* **50** 2989
- [44] Sani A, Hanfland M, Levy D 2002 *J. Solid State Chem.* **167** 446
- [45] Abid A Y, Sun Y, Hou X, Tan C, Zhong X, Zhu R, Chen H, Qu K, Li Y, Wu M, et al. 2021 *Nat. Commun.* **12** 1
- [46] Lemeé N, Infante I C, Hubault C, Boule A, Blanc N, Boudet N, Demange V, Karkut M G 2015 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **7** 19906
- [47] Pereira M, Yudin D, Chico J, Etz C, Eriksson O, Bergman A 2014 *Nat. Commun.* **5** 1
- [48] Sichuga D, Bellaiche L 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 196102
- [49] Kim J H, Lange F F 1999 *J. Mater. Res.* **14** 1626
- [50] Zhang J, Wang Y J, Liu J, Xu J, Wang D, Wang L, Ma X L, Jia C L, Bellaiche L 2020 *Phys. Rev. B* **101** 060103

Brown's equation for the simulation of complex domain structures in ferroelectrics*

Ouyang Xin-Jian Zhang Zi-Yang Zhang Feng
Zhang Jia-Le Wang Da-Wei[†]

(School of Microelectronics, Faculty of Electronics and Information Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

(Received 10 November 2022; revised manuscript received 8 December 2022)

Abstract

Ferroelectric material possesses spontaneous polarization at room temperature, which can be switched by an external electric field. The diverse domain structures within ferroelectric materials, consisting of polarizations in various directions, often significantly affect their physical properties and practical applications. Numerical simulations can aid in comprehending and validating the complex domains observed in experiments. They can also provide guidance for controlling such structures. One popular method for finding dipole configurations is to create an energy model and employ it in Monte-Carlo simulations to find dipole configuration. However, since these simulations usually reaches the ground state of the system (the state with the lowest global energy), they often miss the dipole configurations of interest, such as topological domain structures, which are usually metastable.

Here, in order to simulate complex domain, we introduce Brown's equation, which is originally used for micromagnetic simulation, into the large-scale simulation of ferroelectric materials. Using the effective Hamiltonian as the energy model, we derive the Brown's equations with respect to the electric dipoles in ferroelectric materials, and investigate perovskites such as BaTiO₃ bulk, PbTiO₃ bulk, and SrTiO₃/PbTiO₃/SrTiO₃ sandwiched structures. We demonstrate the reliability and feasibility of Brown's equation in ferroelectrics through the simulation of BaTiO₃ bulk and PbTiO₃ bulk, which are consistent with experiments. Then, using Brown's equation derived in our work, we obtain various domain structures in SrTiO₃/PbTiO₃/SrTiO₃ sandwiched structures, including periodic stripe domains and vortex domains. The simulation results are compared with related experimental results.

Keywords: topological domains, Brown's equation, perovskites

PACS: 75.70.Kw, 75.30.Cr, 77.90.+k

DOI: 10.7498/aps.72.20222150

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11974268, 12111530061).

[†] Corresponding author. E-mail: dawei.wang@xjtu.edu.cn



用于铁电体复杂畴结构模拟的布朗方程

欧阳鑫健 张紫阳 张锋 张佳乐 王大威

Brown's equation for the simulation of complex domain structures in ferroelectrics

Ouyang Xin-Jian Zhang Zi-Yang Zhang Feng Zhang Jia-Le Wang Da-Wei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 057502 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222150

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222150>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

高效绿光钙钛矿发光二极管研究进展

Research progress of efficient green perovskite light emitting diodes

物理学报. 2019, 68(15): 158504 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190647>

扭曲二维结构钝化的钙钛矿太阳能电池

Perovskite solar cells passivated by distorted two-dimensional structure

物理学报. 2019, 68(15): 158802 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190306>

钙钛矿的Rashba效应及其对载流子复合的影响

Rashba effect in perovskites and its influences on carrier recombination

物理学报. 2019, 68(15): 158506 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190675>

铅卤钙钛矿法布里-珀罗谐振腔激光器

Lead halide perovskites Fabry-Pérot resonant cavity laser

物理学报. 2021, 70(5): 054205 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201302>

钙钛矿型氧化物非常规铁电研究进展

Recent progress of improper ferroelectricity in perovskite oxides

物理学报. 2018, 67(15): 157504 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180936>

铅基钙钛矿铁电晶体高临界转变温度的机器学习研究

High critical transition temperature of lead-based perovskite ferroelectric crystals: A machine learning study

物理学报. 2019, 68(21): 210502 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190942>