

Effects of Temperature, Electric Field and Gradient Coefficient on the Bichiral Domain Walls of BaTiO₃

Fang Wang^{1,2}, Lanying Liu³, Bo Li^{3*}, Longfei Liu^{2*}, Yun Ou^{1,2}, Wei Wang⁴

¹Hunan Provincial Key Laboratory of Health Maintenance for Mechanical Equipment, Hunan University of Science and Technology, Xiangtan Hunan

²School of Materials and Engineering, Hunan University of Science and Technology, Xiangtan Hunan

³School of Materials and Engineering, Xiangtan University, Xiangtan Hunan

⁴China Three Gorges Corporation, Chengdu Sichuan

Email: *bli@xtu.edu.cn, *lfliu1@hnust.cn

Received: Apr. 30th, 2017; accepted: May 22nd, 2017; published: May 25th, 2017

Abstract

The domain wall structure of barium titanate (BaTiO₃) ferroelectric materials displays the bichiral structure under the flexoelectric effect, and the unconventional bichiral domain wall has a significant effect on the properties of ferroelectric materials. In this study, the effects of temperature, electric field and gradient coefficient on the bichiral domain wall of the tetragonal phase BaTiO₃ are predicted in the Descartes coordinate system using Landau Ginsburg-Devonshire (LGD) theory. The results show that the wall width increases with the increase of temperature when the temperature is close to the room temperature. The positive electric field makes the polarization curve of the ferroelectric material move up, and increases the forward polarization value. When the negative electric field is applied, the negative polarization value increases. The domain wall width increases with the increase of the gradient coefficient of BaTiO₃ when the dimensionless gradient coefficient is in the range of 0.6 - 2.1. The simulation results will provide a way to tune the properties of ferroelectric materials with the bichiral domain wall.

Keywords

Ferroelectric Materials, Bichiral Domain Wall, Barium Titanate, Landau Ginsburg-Devonshire Theory

*通讯作者。

温度、电场及梯度系数对BaTiO₃双手性畴壁的影响

王 芳^{1,2}, 刘兰英³, 李 波^{3*}, 刘龙飞^{2*}, 欧 云^{1,2}, 王 伟⁴

¹湖南科技大学机械设备健康维护湖南省重点实验室, 湖南 湘潭

²湖南科技大学材料科学与工程学院, 湖南 湘潭

³湘潭大学材料科学与工程学院, 湖南 湘潭

⁴中国三峡集团, 四川 成都

Email: *bli@xtu.edu.cn, *lfliu1@hnust.cn

收稿日期: : 2017年4月30日; 录用日期: 2017年5月22日; 发布日期: 2017年5月25日

摘要

钛酸钡(BaTiO₃, BTO)铁电材料的畴壁结构在挠曲电作用下呈现双手性结构, 非传统的双手性畴壁结构对铁电材料的性能有较大影响。本文以笛卡尔坐标系为参考系, 采用金兹堡-朗道-德希文理论模拟了不同温度、电场以及梯度系数对正方相钛酸钡180°双手性畴壁结构的影响。研究结果表明: 当温度处于室温附近时, 畴壁宽度会随着温度的升高而增加。施加正向电场会使铁电材料的极化曲线向上平移, 增加正向极化值。施加负向电场, 则增加负向极化值。当BTO无量纲梯度系数在0.6~2.1的范围内时, 铁电畴壁的宽度会随着梯度系数的增大而增加。该结果将为双手性畴壁调控铁电材料性能提供可靠的依据。

关键词

铁电材料, 双手性畴壁, 钛酸钡, 金兹堡-朗道-德希文理论

Copyright © 2017 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>

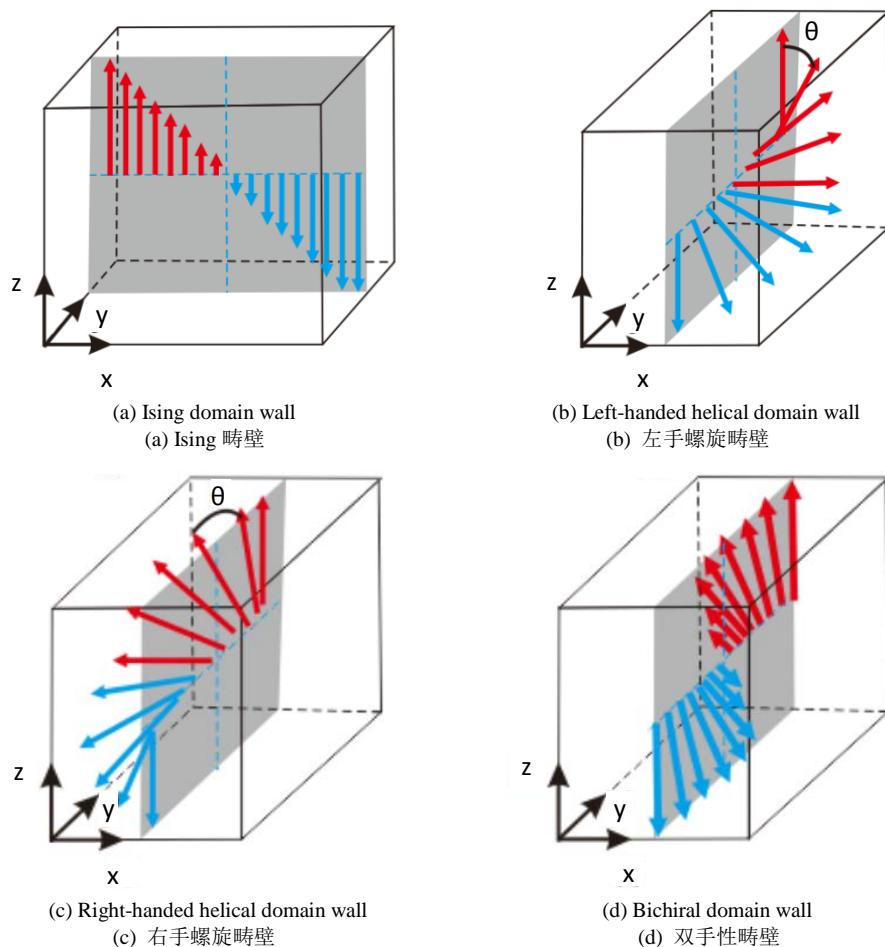


Open Access

1. 引言

铁电材料因具有自发极化、快速响应及低功耗等特性, 被广泛应用于各个领域之中, 如航空航天、固体制冷及传感技术等。目前, 铁电电子器件的尺寸已达到纳米甚至微纳米尺度。随着器件尺寸的不断减小, 畴壁结构对器件性能的影响也越发显著, 如极化的头-头或尾-尾相接会使铁电材料出现导电性。因此, 铁电体畴壁结构对材料性能的影响逐渐成为研究热点[1] [2]。

之前一些以块状钛酸钡(BaTiO₃, BTO)样品为研究对象的研究忽略了畴壁的独特性能[3] [4] [5]。但随着研究的深入, 一些研究者开始对铁电畴壁内部结构展开研究, 试图通过改变外加条件来定向调控铁电材料畴结构, 进而优化铁电材料的性能。Yoshihiro 等人[2]发现 BTO 中的力电耦合对铁电畴壁会产生巨大的影响。目前的观点认为铁电材料 180°畴壁是 Ising 畴壁, 它的特点是畴壁内部极化矢量的方向平行于畴壁, 且仅仅只存在一个极化分量, 如图 1(a)所示。当存在力电耦合时, Ising 畴壁的极化分量会变得不

**Figure 1.** The schematic of 180° domain wall structures**图 1. 180°畴畴壁结构示意图**

稳定，畴壁平面出现另一个极化分量使电中性 180°畴壁出现手性相关的螺旋极化曲线[6] (Bloch 瞴壁)。所谓 Bloch 瞴壁是指畴壁内极化矢量的大小不变，极化矢量方向通过顺时针或逆时针旋转形成螺旋结构，如图 1(b)、图 1(c)所示。有研究者提出了在三角形对称的单畴铁电体中具有两个极化分量的畴壁是非手性的，它的极化在畴壁两边沿着相反的方向翻转，在畴壁中心处极化值为 0 [7] [8]，Houchmandzadeh [9] 课题组把这种畴壁结构叫做“双手性”，所谓的双手性结构是指畴壁两端的极化向量同时翻转，翻转方向相反，且通过畴壁中心的极化值为 0。这种电中性 180°双手性畴壁可以由挠曲电(应变与有序参数梯度的双线性耦合)效应产生，与传统的左手或右手 Bloch 瞴壁相比，在空间翻转中不会破坏畴壁的对称性，如图 1(d)所示。运用具有双手性结构的铁电材料制备的存储器，可以实现超高密度存储。同时，双手性畴壁的迁移势垒，即畴壁从一个稳态翻转到下一个稳态外界所提供的能量，较 Ising 瞴壁低。因此，具有双手性畴壁的铁电材料在低功耗器件的研究与应用方面有巨大的潜力。

有研究报导称，挠曲电效应使铁电材料 180°畴壁具有双手性结构[10]，但没有完整提出外部条件对双手性畴壁的影响。因此，本文以笛卡尔坐标系为参考系，分析不同温度、电场以及梯度系数等因素对电中性 BTO 180°双手性结构畴壁的影响。通过数值计算方法得到 BTO 的极化值，并绘制双手性畴壁的极化曲线图。以此展开对铁电薄膜畴壁手性的研究，有助于掌握使用外场通过畴壁手性来调控铁电薄膜性能的方法，为铁电薄膜性能优化提供理论指导。

2. 研究方法与手段

2.1. 金兹堡-朗道-德希文理论

考虑铁电材料 BTO 与母相呈 $m\bar{3}m$ 对称, 铁电材料 BTO 的电位移场为 $\mathbf{D} = \varepsilon_b \mathbf{E} + \mathbf{P}$, 其中 ε_b 为基底电介常数, \mathbf{E} 为电场向量, \mathbf{P} 为极化向量, \mathbf{D} 满足泊松方程:

$$\operatorname{div} \mathbf{D} = 0 \quad (1)$$

将铁电极化扩展到六阶, 考虑含梯度项、挠曲电项热力学吉布斯自由能写成以下形式[11]:

$$\begin{aligned} G = & A_{ij} + B_{ijkl} P_i P_j P_k P_l + C_{ijklmn} P_i P_j P_k P_l P_m P_n + \frac{1}{2} D_{ijkl} \frac{dP_i}{dx_j} \frac{dP_k}{dx_l} - Q_{ijkl} \sigma_{ij} P_k P_l \\ & - \frac{1}{2} s_{ijkl} \sigma_{ij} \sigma_{kl} + \frac{1}{2} F_{ijkl} \left(\sigma_{ij} \frac{dP_k}{dx_l} - P_k \frac{d\sigma_{ij}}{dx_l} \right) - E_i P_i \end{aligned} \quad (2)$$

其中, A_{ij} 、 B_{ijkl} 、 C_{ijklmn} 分别为二阶、四阶、六阶介电常数, D_{ijkl} 为梯度张量, Q_{ijkl} 为电致伸缩张量, s_{ijkl} 为柔性张量, σ_{ij} 为应力张量, F_{ijkl} 为挠曲电张量, E_i 为电场。上述参数的具体表达形式如下:

$$\begin{aligned} A_{ij} &= a_1 \delta_{ij}, \quad B_{ijkl} = \frac{a_{12}}{2} \langle \delta_{ij} \delta_{kl} \rangle + (a_{11} - a_{12}) g_{ijkl}, \\ C_{ijklmn} &= \frac{a_{123}}{6} \langle \delta_{ij} \delta_{kl} \delta_{mn} \rangle + \left(a_{112} - \frac{a_{123}}{2} \right) \left(a_{111} - a_{112} + \frac{a_{123}}{3} \right) g_{ijklmn}, \\ \langle \delta_{ij} \delta_{kl} \rangle &= \frac{1}{3} (\delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}), \\ D_{ijkl} &= D_{12} \delta_{ij} \delta_{kl} + D_{66} (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) + (D_{11} - D_{12} - 2D_{66}) g_{ijkl}, \end{aligned} \quad (3)$$

δ_{ij} 为不变张量, 当 $i = j = k = l$, $g_{ijkl} = 1$, 否则为 0。当 $i = j = k = l = m = n$, $g_{ijkl} = 1$, 否则为 0。

$$Q_{ijkl} = Q_{12} \delta_{ij} \delta_{kl} + \frac{Q_{66}}{4} (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) + \left(Q_{11} - Q_{12} - \frac{Q_{66}}{2} \right) g_{ijkl} \quad (4)$$

$$s_{ijkl} = s_{12} \delta_{ij} \delta_{kl} + \frac{s_{66}}{4} (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) + \left(s_{11} - s_{12} - \frac{s_{66}}{2} \right) g_{ijkl} \quad (5)$$

$$F_{ijkl} = F_{12} \delta_{ij} \delta_{kl} + \frac{F_{66}}{2} (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) + (F_{11} - F_{12} - F_{66}) g_{ijkl} \quad (6)$$

根据热力学和金兹堡-朗道-德希文理论, 当吉布斯自由能最低时, 铁电材料 BTO 达到稳定极化值。由吉布斯自由能表达式(2), 我们可以获得以下方程:

$$\frac{\partial G}{\partial P_i} - \frac{d}{dx_j} \left(\frac{\partial G}{\partial P'_{i,j}} \right) = 0 \quad (7)$$

根据应力平衡状态得到以下方程:

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = 0 \quad (i, j = 1, 2, 3) \quad (8)$$

对于吉布斯自由能表达式(2)中的应力梯度, 可通过变分来推导应变, 应变公式如下:

$$\varepsilon_{ij} = -\partial G / \partial \sigma_{ij} + d(\partial G / \partial \sigma'_{ij,k}) / dx_k \quad (9)$$

2.2. 参考系的选定

挠曲电对铁电材料 BTO 的 90°畴壁与{100}、{110}晶面族的 180°畴壁并无影响。本篇文章选用笛卡尔直角坐标系来描述双手性畴壁，以 BTO 的电中性 180°双手性结构畴壁作为研究对象，规定铁电极化方向与坐标轴 Z 方向一致时为正，使用坐标轴中的 X 方向与畴壁的 X₂ 方向的夹角度 α 来定义畴壁的方位。计算极化时选用的参考系(X₁,X₂,X₃)中的 X₁,X₂ 平面为畴壁平面，垂直于畴壁平面的 X₃ 为演化方向，参考系、畴壁方位以及电中性 180°双手性结构畴壁见上图 2、图 3 所示，图 3 中的 d 表示畴壁宽度。

将铁电材料 BTO 的相关参数列成表格，如表 1 所示。其中 $D_{ij}^{(u)}$ 表示畴壁翻转前的梯度系数， $D_{ij}^{(\sigma)}$ 表示畴壁翻转后的梯度系数。

2.3. 180°双手性畴壁能量方程的处理与分析

铁电材料 BTO 的电中性 180°双手性结构畴壁平行于铁电材料自发极化值 P_s 的方向，通过求解无应力作用状态下的方程 7 和方程 8，可以得到六个等效的极化状态。考虑极化向量仅在 X₃ 方向变化情况，应力张量 σ_{ij} 也只与垂直畴壁平面的 X₃ 方向有关，且 $\sigma_3 = \sigma_4 = \sigma_5 = 0$ ，在忽略退极化场的情况下，在挠曲电的作用下极化分量只有 Ising 畴壁的极化 P_1 与 Bloch 畴壁的极化 P_2 。在新的参考系中吉布斯自由能式(2)可写成以下形式：

$$\begin{aligned} G = & a_1 \left(P_1^2 + P_2^2 \right) + a_{11} P_1^4 + a_{22}(\alpha) P_2^4 + a_{12} P_1^2 + a_{111} P_1^6 + a_{222}(\alpha) P_2^6 + a_{112} P_1^4 P_2^2 \\ & + a_{122}(\alpha) P_2^4 P_1^2 + \frac{D_{66}}{2} \left(\frac{\partial P_1}{\partial x_3} \right)^2 + \frac{D_{44}(\alpha)}{2} \left(\frac{\partial P_2}{\partial x_3} \right)^2 - Q_{11} \sigma_1 P_1^2 - Q_{22}(\alpha) \sigma_2 P_2^2 \\ & - Q_{66} \sigma_6 P_1 P_2 - Q_{12} \left(\sigma_1 P_2^2 + \sigma_2 P_1^2 \right) - \frac{1}{2} \left[s_{11} \sigma_1^2 + s_{22}(\alpha) \sigma_2^2 \right] - s_{12} \sigma_1 \sigma_2 \\ & - \frac{1}{2} s_{66} \sigma_6^2 + \frac{1}{2} F_{24}(\alpha) \left(\sigma_2 \frac{\partial P_2}{\partial x_3} - P_2 \frac{\partial \sigma_2}{\partial x_3} \right) - EP \end{aligned} \quad (10)$$

P_1 与角度 α 独立，挠曲电作用使畴发生翻转一定角度，Ising 畴壁变得不稳定，需要新的极化分量 P_2 来平衡。因此及计算 P_2 时需要对相关参数进行修正，修正公式如下：

$$a_{22}(\alpha) = a_{11} - \frac{2a_{11} - a_{12}}{4} \sin^2(2\alpha) \quad (11)$$

$$Q_{22}(\alpha) = Q_{11} + \sin^2(2\alpha) \left(\frac{Q_{66}}{4} - \frac{Q_{11} - Q_{12}}{2} \right) \quad (12)$$

$$s_{22}(\alpha) = s_{11} + \sin^2(2\alpha) \left(\frac{s_{66}}{4} - \frac{s_{11} - s_{12}}{2} \right) \quad (13)$$

$$F_{2223}(\alpha) \equiv F_{24}(\alpha) = \frac{\sin(4\alpha)}{4} (F_{66} - F_{11} + F_{12}) \equiv F_a \sin(4\alpha) \quad (14)$$

$$a_{222}(\alpha) = a_{111} - \frac{3a_{111} - a_{112}}{4} \sin^2(2\alpha), \quad a_{122}(\alpha) = a_{112} - \frac{2a_{112} - a_{123}}{4} \sin^2(2\alpha) \quad (15)$$

$$D_{44}(\alpha) = D_{66} + \sin^2(2\alpha) \left(\frac{D_{11} - D_{12}}{2} - D_{66} \right) \quad (16)$$

在热力学中，当能量最低时材料处于稳定状态。因此由公式(10)可以得到在 X₃ 方向的极化分量 P_1 、 P_2 的表达式。如下公式：

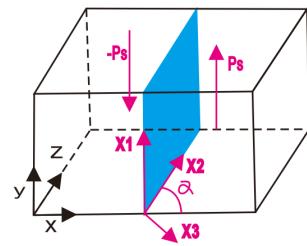


Figure 2. Orientation of the 180° domain wall and reference frames used
图 2. 180°畴壁与参考系的方位示意图

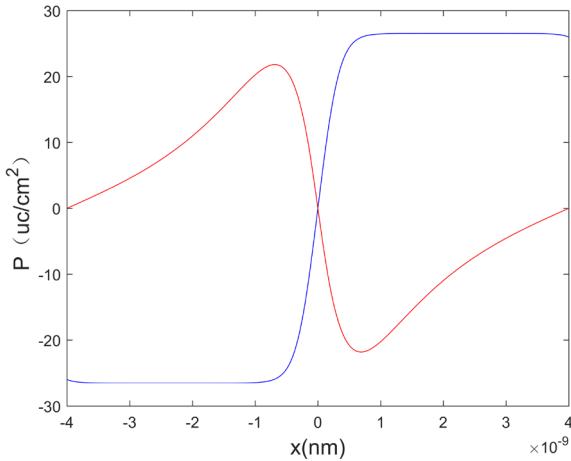


Figure 3. P_1, P_2 profiles of 180° bichiral domain wall
图 3. 180°双手性畴壁结构 P_1, P_2 极化曲线

Table 1. Free energy coefficient of bulk ferroelectric BaTiO₃
表 1. 块状铁电 BaTiO₃ 自由能量系数

参数	值	参考文献
$a_i (\text{C}^{-2} \cdot \text{m} \cdot \text{J})$	$a_i = 3.34(T - 381) \times 10^5$	Ref.[13]
$a_{ij} (\text{C}^{-4} \cdot \text{m}^5 \cdot \text{J})$	$a_{i1} \approx 4.69(T - 393) \times 10^6 - 2.02 \times 10^8$ $a_{i2} \approx 3.230 \times 10^8$	Ref.[13]
$a_{ijk} (\text{C}^{-6} \cdot \text{m}^9 \cdot \text{J})$	$a_{i11} \approx -5.52(T - 393) \times 10^7 + 2.76 \times 10^9$ $a_{i12} = 4.47 \times 10^9, a_{i23} = 4.91 \times 10^9$	Ref.[13]
$D_{ij}^{(u)} (\text{C}^{-2} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{J})$	$D_{11}^{(u)} = 5.1 \times 10^{-10}, D_{12}^{(u)} \approx -0.2 \times 10^{-10}$ $D_{66}^{(u)} \approx 0.2 \times 10^{-10}$	Ref.[14]
$Q_j (\text{C}^{-2} \cdot \text{m}^4)$	$Q_{i1} = 0.11, Q_{i2} \approx -0.043, Q_{66} = 0.059$	Ref.[15]
$s_{ij} (10^{-12} \text{ Pa}^{-1})$	$s_{i1} = 8.3, s_{i2} \approx -2.7, s_{66} = 9.24$	Ref.[15]
$f_{jkl}^{(BST)} (\text{V})$	$f_{i1} = 5.12, f_{i2} = 3.32, f_{66} = 0.045$	Ref.[16]
$F_{ijkl} (10^{-11} \text{ C}^{-1} \cdot \text{m}^3)$	$F_{i1} = 2.46, F_{i2} = 0.48, F_{66} = 0.05$ $F_a^{(BST)} = F_{66} - F_{i1} + F_{i2} \approx -1.93$	Ref.[16] Ref.[16]
$D_{ijkl}^{(\sigma)} \equiv D_{ijkl} (\text{C}^{-2} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{J})$	$D_{11}^{(\sigma)} = 3.52 \times 10^{-10}, D_{12}^{(\sigma)} = -1.24 \times 10^{-10}$	
$D_{\alpha\gamma}^{(\sigma)} = D_{\alpha\gamma}^{(u)} - f_{\alpha\beta} F_{\beta\gamma}$	$D_{66}^{(\sigma)} = 0.2 \times 10^{-10}$	

$$\begin{aligned} & 2a_1P_1 + 4a_{11}P_1^3 + 2a_{12}P_2^2P_1 + 6a_{111}P_1^5 + 4a_{112}P_1^3P_2^2 + 2a_{122}(\alpha)P_1P_2^4 \\ & - D_{66} \frac{\partial^2 P_1}{\partial x_3^2} - 2(Q_{11}\sigma_1 + Q_{12}\sigma_2)P_1 - Q_{66}\sigma_6P_2 - EP = 0 \end{aligned} \quad (17a)$$

$$\begin{aligned} & 2a_1P_2 + 4a_{22}(\alpha)P_2^3 + 2a_{12}P_2^2P_1 + 6a_{222}(\alpha)P_2^5 + 2a_{112}P_1^4P_2 + 4a_{122}(\alpha)P_1^2P_2^3 \\ & - D_{44}(\alpha) \frac{\partial^2 P_2}{\partial x_3^2} - 2(Q_{22}(\alpha)\sigma_2 + Q_{12}\sigma_1)P_2 - Q_{66}\sigma_6P_1 - F_{24}(\alpha) \frac{\partial \sigma_2}{\partial x_3} - EP = 0 \end{aligned} \quad (17b)$$

远离畴壁中心的极化边界值为

$$P_1(x_3 \rightarrow -\infty) = -P_s, P_1(x_3 \rightarrow \infty) = P_s, P_2(x_3 \rightarrow \pm\infty) = 0 \quad (18)$$

弹性应力自由的表达式

$$\sigma_{ij}(x_3 \rightarrow \pm\infty) = 0 \quad (19)$$

弹性问题在一维求解的情况下，方程(9)非零弹性应力分量的表达式如下[10]:

$$\sigma_1 = \frac{(-F_{24}(\alpha)s_{12}(\partial P_2/\partial x_3) + (P_s^2 - P_1^2)[Q_{11}s_{22}(\alpha) - Q_{12}s_{12}] + P_2^2[Q_{22}(\alpha)s_{12} - Q_{12}s_{22}(\alpha)])}{s_{22}(\alpha)s_{11} - s_{12}^2} \quad (20a)$$

$$\sigma_2 = \frac{(F_{24}(\alpha)s_{12}(\partial P_2/\partial x_3) + (P_s^2 - P_1^2)[Q_{12}s_{11} - Q_{11}s_{12}] + P_2^2[-s_{11}Q_{22}(\alpha) + Q_{12}s_{12}])}{s_{22}(\alpha)s_{11} - s_{12}^2} \quad (20b)$$

$$\sigma_6 = -\frac{Q_{66}}{s_{66}}P_1(x_3)P_2(x_3) \quad (20c)$$

3. 结果与讨论

3.1. 温度对双手性畴壁的影响

根据表 1 中可以看出，铁电材料介电常数 a_1 、 a_{11} 与温度相关，且 $a_0 = -a_1$ 。不同的温度会使铁电材料的极化值发生改变，也会改变铁电材料的性能。研究不同温度对 BTO 电中性 180° 双手性结构畴壁的影响，对调控铁电材料的性能具有重要作用。在本文中，我们计算了 248 K 、 298 K 、 318 K 三个温度下双手性结构畴壁的极化值。由于 Ising 畴壁是铁电材料 BTO 180° 畴壁的固有形式，计算 P_1 时，可以忽略式 17(a)中的 P_2 ，得到 P_1 的极化曲线如图 4。将 P_1 代入 17(b)中进行线性化处理，得到 P_2 的极化曲线如图 5。

结果表明：BTO 在不同的温度下有不同的极化值，其畴壁宽度也会随温度的改变而变化。铁电材料处于高于室温的环境时，其极化值增大畴壁宽度变窄；处于低于室温的环境时，其极化值会减小畴壁宽度变宽。这种现象与铁电材料介电常数相关，高于室温时 a_0 减小， a_1 与 a_{11} 变大，吉布斯自由能也随着减小，故铁电材料的正向与负向极化值也随之减小。由于双手性畴壁的极化曲线是中心对称的，畴壁两端的极化减小使得畴壁宽度减小；低于室温时，吉布斯自由能增大，铁电材料的畴壁两端的极化值增大，导致畴壁宽度增大。

3.2. 电场对双手性畴壁的影响

铁电材料具有自发极化特性，同时其极化的大小、方向能在外电场的作用下而发生改变。施加的电场与自发极化方向相同为正电场，与极自发极化方向相反的电场为负电场。通过调控施加的电场，能得到 BTO 性能最优的条件。我们计算了对 BTO 薄膜施加正电场、负电场以及它在无电场作用下的三种情况，模拟外部电场对 BTO 双手性结构畴极化状态的影响。 P_1 与 P_2 的计算方法与 3.2 中相同，并假设外

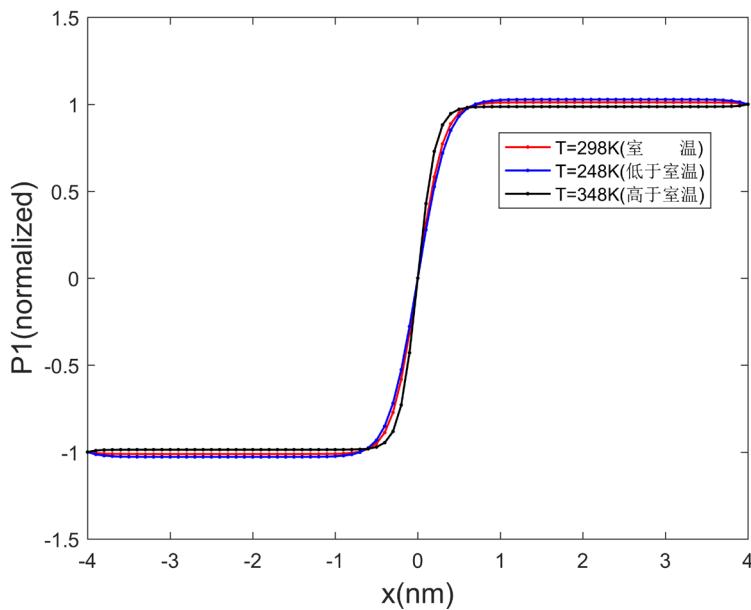


Figure 4. P_1 profile at different temperature
图 4. 不同温度下的 P_1 曲线

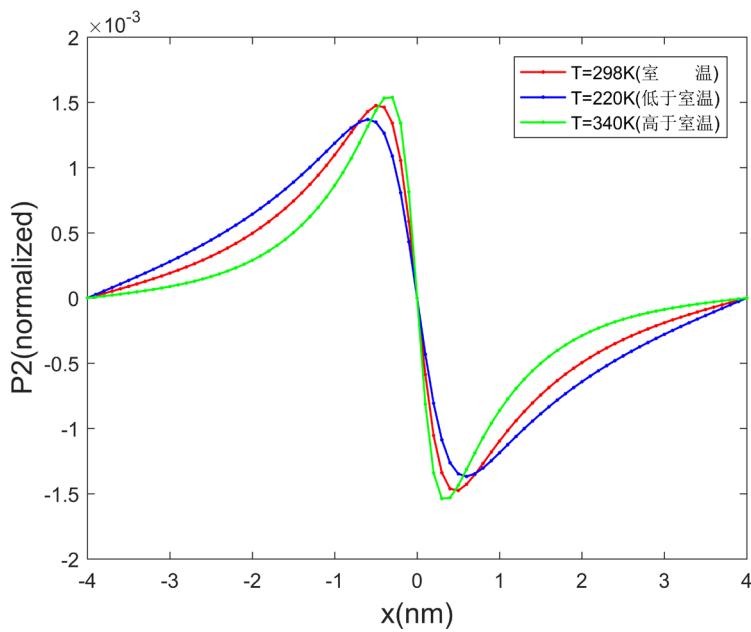


Figure 5. P_2 profile at different temperature
图 5. 不同温度下的 P_2 曲线

部电场对无穷远处的极化值无影响。 P_1 和 P_2 在不同电场下的极化曲线如图 6、图 7 所示。

结果表明：外部电场会改变铁电材料的极化值。对比于无电场作用的情况，正电场会使 P_1 、 P_2 的极化曲线向上平移，增加正向极化值；相反，负电场会使 P_1 、 P_2 的极化曲线向下平移，增加负向极化值。这是由于当外加电场的方向为正时，畴壁两端的极化沿正电场方向发生一定翻转，极化状态改变，导致畴壁两端极化增大，造成极化曲线上移；当外加电场方向为负时，畴壁两端的极化沿负电场方向发生一定翻转，极化状态改变，导致畴壁两端极化增大，造成极化曲线下移。

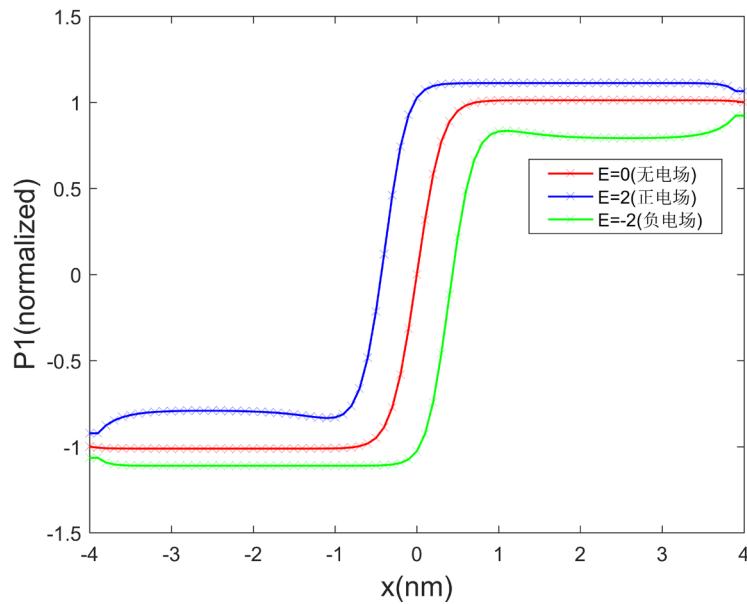


Figure 6. P_1 profile at different electric field
图 6. 不同电场的 P_1 曲线

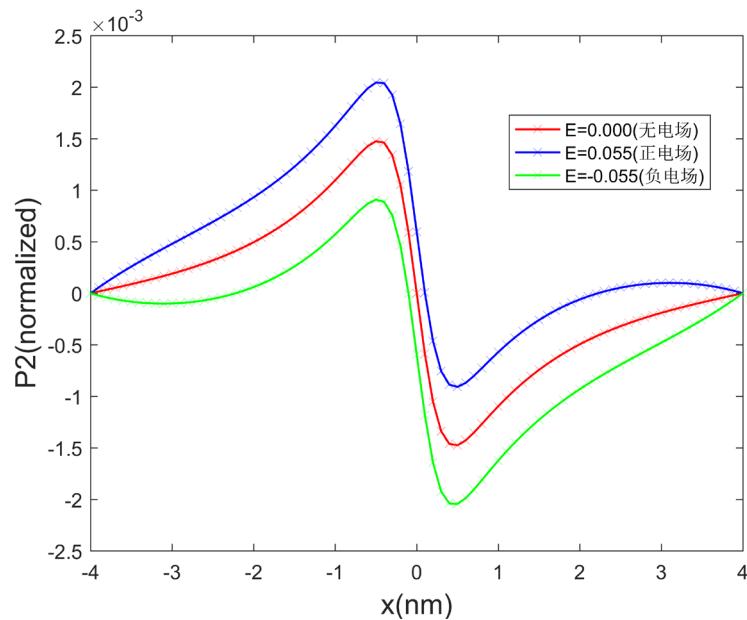


Figure 7. P_2 profile at different electric field
图 7. 不同电场的 P_2 曲线

3.3. 梯度系数对双手性畴壁的影响

在描述铁电材料吉布斯自由能的梯度能量项时，引入了梯度系数张量 D_{ijkl} 。同时，研究者发现 BTO 的无量纲梯度系数 D_{11}^* 的取值范围为 0.6~2.1 [12]。因此，不同的梯度系数会改变 BTO 的极化值。本文在 0.6~2.1 区间内选取间隔为 0.5 的梯度系数，研究不同梯度系数对 BTO 电中性 180° 双手性畴壁极化状态的影响。 P_1 与 P_2 的计算方法与 3.2 中相同，通过数值计算得到 P_1 和 P_2 在不同梯度系数下的极化曲线如图 8、图 9 所示：

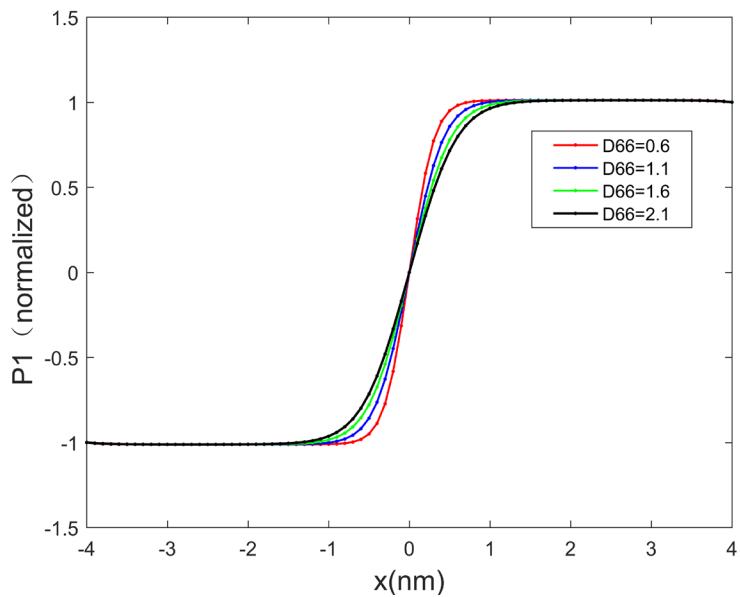


Figure 8. P_1 profile at different gradient coefficient
图 8. 不同梯度系数下的 P_1 曲线

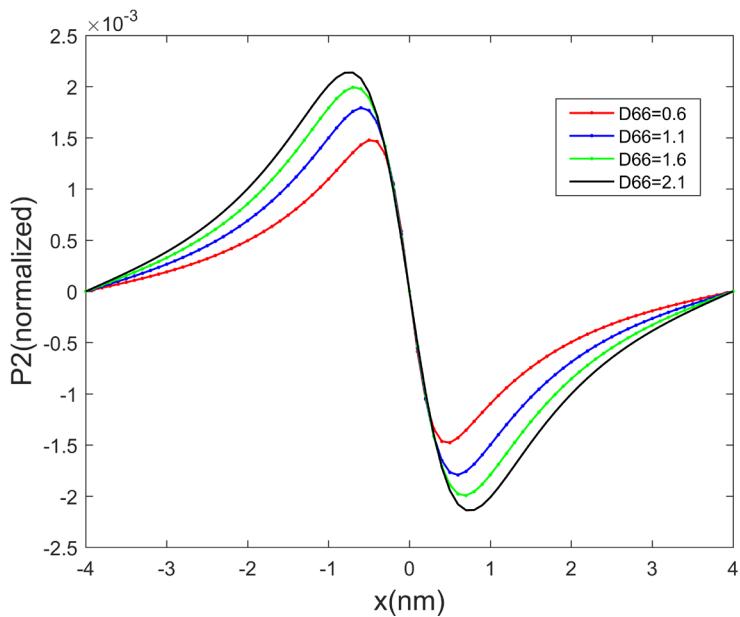


Figure 9. P_2 profile at different gradient coefficient
图 9. 不同梯度系数下的 P_2 曲线

结果表明：当 BTO 梯度系数 D_{11}^* 的取值范围为 0.6~2.1 时，随着梯度系数的增加，BTO 的极化值会增加，畴壁会逐渐变宽，但畴壁中心的极化值仍然为零。这是由于梯度系数的增加会使铁电材料的梯度能增加，从而使吉布斯自由能增大，导致极化值增大。双手性畴壁的极化曲线是中心对称的，畴壁两端的极化增大使得畴壁宽度增大。

4. 总结

基于 BTO 电中性 180°双手性结构畴壁，我们模拟了温度、外部电场、梯度系数对双手性畴壁的影响。

通过数值计算方法, 得到了相应的极化值, 并得出以下结论:

- 1) 温度改变 BTO 的极化值, 并使畴壁宽度发生变化。当铁电材料处于高于室温的环境时, 其极化值增大, 畴壁宽度变窄; 当铁电材料处于低于室温的环境时, 其极化值会减小, 畴壁宽度变宽;
- 2) 外部电场并不会改变 BTO 的畴壁宽度, 但会改变其极化值。对比于无电场作用的情况时, 正电场会使 P_1 、 P_2 的极化曲线向上平移, 增加正向极化值; 相反, 负电场会使 P_1 、 P_2 的极化曲线向下平移, 增加负向极化值;
- 3) 不同的梯度系数会对手性畴壁的极化值与畴壁宽度产生影响。当 BTO 梯度系数 D_{11}^* 的取值范围为 0.6~2.1 时, 随着梯度系数的增加, BTO 的极化值会增加, 畴壁会逐渐变宽。

致 谢

感谢国家自然科学基金(11402222 & 11502078)和湖南省教育厅一般项目(14C1092 & 15C0535)的支持。

参考文献 (References)

- [1] Fabrega, L., Marti, X., Sanchez, F. and Fontcuberta, J. (2011) Chiral Domains in Cycloidal Multiferroic Thin Films: Switching and Memory Effects. *Physical Review Letters*, **107**, Article ID: 257601.
- [2] Ishibashi, Y. and IwataI, M. (2007) Domains and Domain Walls in Ferroelectric $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$: A System with Biquadratic Order Parameter Coupling. *JJAP*, **46**, 272-275. <https://doi.org/10.1143/jjap.46.272>
- [3] Goncalves-Ferreira, L., Redfern, S.A.T., Artacho, E. and Salje, E.K.H. (2008) Ferrielectric Twin Walls in CaTiO_3 . *Physical Review Letters*, **101**, Article ID: 097602. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.097602>
- [4] Tagantsev, A.K., Courtens, E. and Arzel, L. (2001) Prediction of a Low-Temperature Ferroelectric Instability in Anti-phase Domain Boundaries of Strontium Titanate. *Physical Review B*, **64**, Article ID: 224107. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.64.224107>
- [5] Sluka, T., Tagantsev, A., Bednyakov, P. and Setter, N. (2013) Free-Electron Gas at Charged Domain Walls in Insulating BaTiO_3 . *Nature Communications*, **4**, 1808. <https://doi.org/10.1038/ncomms2839>
- [6] Stepkova, V., Marton, P. and Hlinka, J. (2012) Stress-Induced Phase Transition in Ferroelectric Domain Walls of BaTiO_3 . *Journal of Physics: Condensed Matter*, **24**, Article ID: 212201. <https://doi.org/10.1088/0953-8984/24/21/212201>
- [7] Scrymgeour, D.A., Gopalan, V., Itagi, A., Saxena, A. and Swart, P.J. (2005) Phenomenological Theory of a Single Domain Wall in Uniaxial Trigonal Ferroelectrics: Lithium Niobate and Lithium Tantalate. *Physical Review B*, **71**, Article ID: 184110. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.71.184110>
- [8] Lee, D., Behera, R.K., Wu, P., Xu, H., Li, Y.L., Sinnott, S.B., Phillipot, S.R., Chen, L.Q. and Gopalan, V. (2009) Mixed Bloch-Néel-Ising Character of 180° Ferroelectric Domain Walls. *Physical Review B*, **80**, Article ID: 060102. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.149904>
- [9] Houchmandzadeh, B., Lajzerowicz, J. and Salje, E. (1991) Order Parameter Coupling and Chirality of Domain Walls. *Journal of Physics: Condensed Matter*, **3**, 5163. <https://doi.org/10.1088/0953-8984/3/27/009>
- [10] Yudin, P.V., Tagantsev, A.K., Eliseev, E.A., Morozovska, A.N. and Setter, N. (2012) Bichiral Structure of Ferroelectric Domain Walls Driven by Flexoelectricity. *Physical Review B*, **86**, Article ID: 134102. <https://doi.org/10.1103/physrevb.86.134102>
- [11] Eliseev, E.A., Yudin, P.V., Kalinin, S.V., Setter, N., Tagantsev, A.K. and Morozovska, A.N. (2013) Structural Phase Transitions and Electronic Phenomena at 180-Degree Domain Walls in Rhombohedral BaTiO_3 . *Physical Review B*, **87**, Article ID: 054111. <https://doi.org/10.1103/physrevb.87.054111>
- [12] Hong, L., Soh, A.K., Liu, S.Y. and Lu, L. (2009) Vortex Structure Transformation of BaTiO_3 Nanoparticles through the Gradient Function. *Journal of Applied Physics*, **106**, Article ID: 024111. <https://doi.org/10.1063/1.3186038>
- [13] Bell, A.J. (2001) Phenomenologically Derived Electric Field-Temperature Phase Diagrams and Piezoelectric Coefficients for Single Crystal Barium Titanate under Fields along Different Axes. *Journal of Applied Physics*, **89**, 3907. <https://doi.org/10.1063/1.1352682>
- [14] Marton, P., Rychetsky, I. and Hlinka, J. (2010) Domain Walls of Ferroelectric BaTiO_3 within the Ginzburg-Landau-Devonshire Phenomenological Model. *Physical Review B*, **81**, Article ID: 144125. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.81.144125>

- [15] Pertsev, N.A., Zembilgotov, A.G. and Tagantsev, A.K. (1998) Effect of Mechanical Boundary Conditions on Phase Diagrams of Epitaxial Ferroelectric Thin Films. *Physical Review Letters*, **80**, 1988.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.80.1988>
- [16] Ponomareva, I., Tagantsev, A.K. and Bellaiche, L. (2012) Finite-Temperature Flexoelectricity in Ferroelectric Thin Films from First Principles. *Physical Review B*, **85**, Article ID: 104101. <https://doi.org/10.1103/physrevb.85.104101>

Hans 汉斯

期刊投稿者将享受如下服务：

1. 投稿前咨询服务 (QQ、微信、邮箱皆可)
2. 为您匹配最合适的期刊
3. 24 小时以内解答您的所有疑问
4. 友好的在线投稿界面
5. 专业的同行评审
6. 知网检索
7. 全网络覆盖式推广您的研究

投稿请点击：<http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱：ms@hanspub.org