标题：反斯格明子铁电介质

作者：Mauro A. P. Gonçalves[1], Marek Paściak[1], Jiří Hlinka[1]*

所属机构：[1]

捷克科学院物理研究所；捷克共和国布拉格，182 21

*通讯作者。电子邮箱：hlinka@fzu.cz

摘要：

典型的磁性斯格明子是铁磁体中一串反转的磁化强度，其外层由类涡旋自旋织构包裹而受到保护，因此其横截面具有正整数拓扑荷。一些磁体会形成反斯格明子，即携带负拓扑荷的反粒子弦。在此，我们证明，拓扑等价但纯电性的反斯格明子也能存在于铁电材料中。具体而言，我们的计算机实验揭示，作为铁电材料原型的钛酸钡能够容纳反斯格明子。其核心周围的极化图样令人联想到装饰结的环形缠绕，而非典型的磁性反斯格明子纹理。我们表明，钛酸钡中的反斯格明子直径仅为 2–3 nm，具有六边形横截面，拓扑荷则为奇特的 −2。我们推断，非谐电极化率的适度各向异性与钛酸钡晶体中极化关联的特征各向异性恰好结合，有利于反斯格明子的形成。

重要性说明：

磁性斯格明子——具有非平庸旋涡自旋图样的对象——的预测与实验确认，彻底改变了纳米尺度磁性的物理学，并为自旋电子学开辟了新的前景。尽管电极化的相关性本质上更短暂、变化更快，电斯格明子学的最新进展仍沿着这些创新继续发展。本研究揭示，经典铁电钙钛矿 $BaTiO_3$ 能够自发形成宽度为 2–3 nm 的极性柱，其周围环绕着一种此前从未被描述过的独特非共线极化图样。我们分析了这种图样的形成与稳定机制。根据其为负整数的拓扑荷，我们将这种孤子命名为“铁电反斯格明子”。

一句话总结：

Ultr钛酸钡中的小型铁电畴带有负拓扑荷。

正文：

在手性铁磁体中发现拓扑稳定的纳米尺度磁化纹理涡旋缺陷[1,2]，，即所谓的磁性斯格明子，为信息存储技术[3] 以及研究拓扑霍尔效应[6] 和斯格明子霍尔效应[7–9]等引人入胜的新物理现象[4,5] 开辟了令人惊叹的前景和广阔舞台。如今人们已经充分认识到，斯格明子及类似的拓扑缺陷可以在许多其他磁体和反铁磁体中实现稳定，其中一些甚至是非手性或中心对称的[10–15]。

在非磁性铁电材料中，也观察到了几何形态类似的电极化纹理纳米尺度旋涡状缺陷[16]。由于其尺寸确实处于纳米尺度[16–18]，且具有负电容 [19] 或涌现手性 [20–24] 等引人关注的物理性质，这些缺陷备受关注。在由纳米尺度铁电 $PbTiO_3$ 层与顺电 $SrTiO_3$ [16] 层交替构成的纳米结构中，铁电斯格明子的实验证据表明，界面效应具有基本作用。随后，这些观察结果引出了一个问题：这类铁电斯格明子能否在铁电材料本身的块体中稳定存在?

自然候选材料是指其畴壁厚度范围内的电极化预计会逐渐旋转的材料。图1a展示了块体 $PbTiO_3$中柱状纳米畴的一种可能构型。该纳米畴的极化沿 z 方向，其周围则是极化方向相反的基体。文献[17] 中的计算研究表明，在 $PbTiO_3$, 中，畴壁处会形成面内极化，构成一个闭合环。由此形成的极化排列对应一种稳定的类布洛赫斯格明子。我们最初的研究动机，是验证类似的纳米畴能否存在于 $BaTiO_3$的菱方相中。本文报道的反斯格明子就是这样一种稳定的纳米畴，但其极化图样的几何形态和拓扑荷实际上与 $PbTiO_3$ 中的截然不同。我们在此表明，这种 $BaTiO_3$纳米畴的独特之处在于其反斯格明子属性。

拓扑学与晶体学考量

磁性斯格明子和铁电斯格明子都是矢量序参量场中的线状缺陷。斯格明子的非平庸拓扑由非零斯格明子数 N_{sk} 表征，其定义为在垂直于斯格明子线的 xy 平面上对拓扑密度 $q(x, y) = (1/4\pi)\ \mathbf{u}.(\partial_x\mathbf{u} \times \partial_y\mathbf{u})$ 的积分 [18,25,26]，其中 u 是定义序参量方向的单位矢量场。具有不变符号的拓扑荷可定义为 $Q = u_z(0).N_{sk} = - u_z(\infty).N_{sk}$，其中 $u_z(0)$ 和 $u_z(\infty)$ 分别是缺陷核心处及远离缺陷处场方向矢量的 z 分量。斯格明子的 Q 值为正，反斯格明子的 Q 值为负。对于铁电斯格明子，矢量场 u 通常由各晶胞的局部电偶极子确定，并采用离散形式的拓扑荷表达式，而非积分形式 [17,18]。具体而言，图1a所示的 $PbTiO_3$ 斯格明子具有不变拓扑荷 +1，这一数值也常见于 GaV_4S_8 [27] 中的奈尔磁斯格明子或 MnSi [1,4]中的布洛赫磁斯格明子。相比之下，我们在图2中报告了一种稳定的 $BaTiO_3$, 铁电纳米畴，其拓扑荷为 $Q = -2$。

图1示意了反平行极化纳米畴可能具有的整体几何形状。根据静电学考量，畴边界应平行于自发铁电极化方向。纳米畴的横截面应符合铁电畴本身的宏观晶体对称性；若畴壁能具有强各向异性，其横截面将呈多边形，并与晶体学轴对齐。

为更精确地描述我们的试探构型和弛豫构型，我们为 $PbTiO_3$, 引入了 (x, y, z) 笛卡尔坐标系，而 (x′, y′, z′) 对应 $BaTiO_3$。晶体学方向和晶面采用母相立方结构的穆勒指数 h、k、l 描述。我们注意到，对于四方铁电相 $PbTiO_3$, ，x ∥ [100] ，且唯一的铁电轴为 z ∥ [001]；而对于 $BaTiO_3$, 的菱方相基态，x′ ∥[01-1], ，且将唯一的铁电轴设为 z′ ∥ [111]。带星号上标的括号 ({}*) 用于表示在给定铁电畴态（例如核心的畴态）对称性下等价的晶面子集。例如，对于极化沿 z 方向的 $PbTiO_3$ 畴，{100}* 晶面集合仅包含 (100) 和 (010) 晶面。这些低指数晶面就是图1a所示的 $PbTiO_3$ 畴壁。同样，$BaTiO_3$ 中的稳定纳米畴应由 {1-10}* 晶面集合或 {2-1-1}* 晶面集合界定。注意，这两个集合都包含平行于铁电轴 z′ 的晶面。按照文献 [28], 的约定，我们也可以表述为：$PbTiO_3$ 斯格明子由中性 T180{100} 畴壁界定（即四方相中取向为 {100}*、对应自发极化旋转 180 度的畴壁）；而菱方 $BaTiO_3$ 中的稳定纳米畴预计由 R180{1-10} 畴壁（如图1b所示）或 R180{2-1-1} 畴壁（如图1c所示）界定。

值得注意的是，Q 非零的必要条件是存在非共面序参量织构。显然，图1a中 $PbTiO_3$ 纳米畴的极化分布具有非共面性，这与其 T180{100} 畴壁预期呈现的非共线类布洛赫（手性）结构有关 [29]。同样，根据唯象金兹堡-朗道理论和密度泛函理论计算，$BaTiO_3$, 中的 R180{1-10} 和 R180{2-1-1} 畴壁都应具有显著的非共线特征 [28,30–32]。因此，菱方 $BaTiO_3$ 似乎是寻找有趣拓扑缺陷的理想候选材料。

计算机实验

由于菱方 $BaTiO_3$ 中反平行畴壁的确切形状及其相应能量对金兹堡-朗道势的参数化方式十分敏感 [31,32], ，因此我们在此采用了一种更可靠的、基于第一性原理的原子壳层模型势，该势针对 $BaTiO_3$ 分子动力学模拟进行了优化 [33,34]。该模型已成功用于重现实验数据，包括其立方相中的反常热漫散射图样 [35] 以及非晶 $BaTiO_3$ [36]中的短程关联。每个原子均由核与壳构成，各自具有位置和电荷。势能包括成对短程相互作用以及静电库仑相互作用。我们采用了由 12×12×4 个六方晶胞构成的超胞（即 8640 个独立原子），并施加周期性边界条件。我们通过在 1 K 温度下进行经典分子动力学模拟，对各种初始构型进行弛豫，以寻找铁电基态中的稳定拓扑缺陷。

为避免对非零拓扑荷产生偏向，我们的大多数初始构型均为共线极化纹理。我们以一个具有 $P_{z'} < 0$ 的均匀极化超胞为起点，并将六边形横截面的柱状区域内的极化反转，对应于图1b。正 $P_{z'}$ 六边形区域的内径 D 为$D \approx N.d$，其中 d 是母相立方相中 (1 -1 0) 钛平面的标称间距，N 是六边形的无量纲直径。

由此产生的极化纹理

弛豫后的结构来自初始拓扑平庸（$Q = 0$）的泡状纳米畴，其中 $N = 11$ 且 $D \approx 3$ nm，如图 2a 所示。尽管整体柱状形状得以保持，且 $P_{z'}$ 分量变化不大，但纳米畴周长附近自发形成了显著的面内极化分量。需要强调的是，面内极化的大小与单畴自发极化的数值相当（见图 2a 中的标注）。

我们注意到，极化的径向梯度和切向梯度的大小也相当。因此，前面设想的畴壁图像（图 1b 和 c）实际上并不十分恰当：畴壁宽度与各个畴壁线段的长度大致相同。相反，图 2a 中箭头所示的面内极化纹理，是由六个不同涡旋构成的凝聚态；这些涡旋的极化旋转方向交替为顺时针和逆时针，每个涡旋的中心都位于 $P_{z'} > 0$ 六边形的一条边上。图 2b 展示了所得极化排列的简化示意图，突出了反转的面外极化与旋绕的面内极化这两个相互交织的组成部分。

图 2c 展示了这一弛豫态的拓扑密度，其中每个涡旋中心处都有六个显著的局部极小值，六边形顶点附近则有六个相当小的极大值。在由投影后的 Ti 离子位置构成的六角晶格中，各个等边三角形晶格面的贡献，对应于这些基本晶格面三个顶点处偶极子所张定向立体角的精确值。我们已确认，没有偶极子为零，也没有任何晶格面所对应的立体角极其接近 2π这一临界边界值。因此，将所有这些单独贡献相加后，得到的总拓扑荷 $Q = -2$ 毫无歧义。这就是这一拓扑缺陷值得称为铁电反斯格明子的原因。

铁电反斯格明子的稳定性

图 2 所示的弛豫构型对应于一个局部能量极小值——通过检查超胞晶格内部自由度对应的动力学矩阵的所有特征值的符号，确认了该构型对无穷小扰动的稳定性。为了进一步了解反斯格明子构型的稳健性，我们还尝试施加沿 z' 轴方向的强电场来消除纳米畴。结果表明，纳米畴在很宽的 -850 kV/cm $< E'_z <$ 1000 kV/cm 范围内都稳定。在此范围内，拓扑荷始终等于 -2。由于临界电场仅比单畴态均匀翻转的理想矫顽电场极限（E_c = 4600 kV/cm）低 4–5 倍，我们得出结论：这种铁电反斯格明子具有非凡的抗扰能力。

反斯格明子几何结构的唯一性

我们注意到，决定 $P_{z'} > 0$ 区域宽度的反斯格明子直径，与 $P_{z'}$ （x'）畴壁轮廓的展宽范围相当（图 2d）。因此，我们尝试通过改变初始拓扑平庸纳米畴的尺寸，来稳定不同大小的反斯格明子（见图 3）。我们能够生成的最小反斯格明子具有 N = 9 （见图 3b）。当初始直径更小时，纳米畴会衰变回单畴基态（见图 3a）。图 3 展示了 N = 13 反斯格明子。所有解都具有相同的 Q = −2 拓扑荷和相似的几何结构。

我们还探索了其他初始纳米畴构型。总体而言，我们观察到，在直径为 3-4nm 的紧凑柱状纳米畴内，简单地反转 $P_{z'}$

通常会自然演化至$Q = -2$ 态。尽管存在某些结构差异，这些持久存在的拓扑缺陷具有相同的整体几何形状（见图 4c、4i、4l 和图 2a）。具体而言，最终的反斯格明子纹理与初始纳米畴是否具有 R180{1 -1 0} 或 R180{2 -1 -1} 畴壁无关（比较图 2a 和 4a）。在其他情况下，初始纳米畴演化为单畴态。例如，类似于图 2a 但面内极化反转的构型并不稳定（见图 4d-f；注意，翻转 y' 至 -y′ 并非母相的一种对称操作）。总体而言，这些结果表明，反斯格明子解比我们测试过的任何其他柱状纳米畴都稳定得多。

讨论

值得注意的是，具有 Q < 0 的磁性反斯格明子缺陷已为人所知[39], , 甚至可以从经典的 Bogdanov-Yablonskii 现象学理论[40,41]推导得出。然而，$BaTiO_3$ 的母相顺电相具有中心对称性，因此体相 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用的形式铁电类比物[42] 是不允许存在的。因此，Bogdanov-Yablonskii 理论 [40] 无法解释本研究所考察的反斯格明子的存在；此外，由于我们的模拟中不存在界面，我们也可以排除界面 Dzyaloshinskii-Moriya 机制[43] 。

同样，基于畴壁呈现布洛赫特征而提出的 $PbTiO_3$, 体相斯格明子稳定化情景，并不适用于 $BaTiO_3$，菱方铁电相中反斯格明子的形成，因为观测到的反斯格明子并非由布洛赫畴壁构成。事实上，“布洛赫”极化分量（面内切向分量）的极化分布在假想畴壁中心附近变号（见图 2d 中的 $P_{y'}$（x’）），而不像 $PbTiO_3$ 情形那样达到其绝对值最大值。

这种所谓的双手性畴壁分布 [44,45] 此前被发现，其能量与 $BaTiO_3$ [28,30], 平面畴壁中的布洛赫解非常接近，这进一步证实了这一特征会出现在反斯格明子中。根据对若干平面双手性畴壁和布洛赫畴壁所进行的更严格分析得出的结论 [46], , 我们可以推断，R180{1-10} 双手性畴壁的稳定性得益于母相电极化率非谐性的适度各向异性（有利于极化旋转），以及极化关联显著的各向异性。双手性畴壁与图 2d 中 $P_{y'}(x')$ 分布的相似性使我们可以推断，观测到的反斯格明子图样同样源于 $BaTiO_3$, 非谐电极化率的适度各向异性与极化关联显著的各向异性的共同作用。前者与其四方晶系、正交晶系和菱方铁电相之间的竞争有关；后者也体现在 $BaTiO_3$, 高度各向异性的软声子色散关系 [47] 以及其独特的漫散射图样 [35]中。

最后，最引人注目的是 $P_{z'}>0$ 六边形各角上的极化图样：这些位置的面内极化最为显著，且主要呈径向取向。然而，与奈尔斯格明子不同的是，这个径向分量交替地朝外和朝内。径向（奈尔）极化的方向由其母相立方晶体各向异性决定。这种各向异性对反斯格明子的稳定性至关重要，图 4d 所示翻转图样的塌缩便证明了这一点。正是这种适度但不可或缺的各向异性，也决定了沿 $P_{z'}>0$ 六边形周长绕行时面内极化的旋转方向和旋转圈数，最终使 |Q| > 1。

据我们所知，目前尚无关于类似铁电反斯格明子缺陷的研究；不过，磁性系统中已有人研究过较高的斯格明子数$|Q| > 1$ [48–52]。文献中描述的几何形态最接近的织构，可能是$Q = -2$图样，它们存在于六方（也称三角）磁体的磁性织构中 [49,50] 以及超薄磁性薄膜中[53,54]。尽管磁相互作用与铁电相互作用大不相同，六方磁体的相态仍可为研究孤立铁电反斯格明子凝聚成铁电反斯格明子晶格提供启发。这些磁性与铁电反斯格明子的一个显著共同点是，拓扑密度仅集中在少数几个“热点”中，且每个热点具有分数拓扑荷[18,49,55]。在当前的铁电反斯格明子中，这类热点有六个，每个热点都承载了整个反斯格明子中相应涡旋段的“类夸克”$Q \approx -1/3$拓扑荷的很大一部分。

结论

总之，我们采用成熟的基于第一性原理的原子尺度方法[33–34,37–38]，研究了$BaTiO_3$ 低温铁电相中的超小柱状铁电纳米畴。

我们不仅证实了直径仅为 2–3 nm 的铁电纳米畴能够稳定存在，还发现这些纳米畴具有独特的六边形形状，并会在纳米畴的每个侧面各形成一个涡旋，共形成六个涡旋；每个涡旋都携带约 −1/3 的分数拓扑荷，因此总斯格明子数为 −2，这一数值十分罕见。通过计算，我们证实了这些铁电反斯格明子的稳定性及其对电场的显著抵抗能力，并探究了它们的形成动力学。

这项工作表明，纳米尺度铁电拓扑缺陷不仅存在于 $PbTiO_3$,中，也存在于其他铁电材料中；不同的铁电材料还可能具有截然不同的真正纳米尺度拓扑缺陷。我们相信，这些发现将推动铁电斯格明子学在实验和理论方面的进一步发展。

方法

原子间势。本研究所有原子尺度计算/模拟均采用一种原子间势，该势最初是为 $BaTiO_3$ 和 $SrTiO_3$ [33]固溶体的原子尺度分子动力学而开发的。其参数化主要依据一组经过恰当选择的辅助原子构型的能量、力、应力和声子性质，这些数据均通过密度泛函理论 [34]计算得到。本文采用的模型参数取自文献 [34]。该势采用壳层模型框架，通过将每个原子表示为一个原子实和一个壳层来模拟原子极化率；其非谐核壳相互作用尤其适合重现铁电行为 [33]。具体而言，该参数化模型能够预测 $BaTiO_3$ 正确的相变顺序（立方相-四方相转变温度为 $T_C \approx 360$ K，而本文研究的菱方铁电相可稳定存在至 ~ 140 K [33]）。

纳米畴构造与弛豫。我们使用由 12×12×4 个菱方晶系 $BaTiO_3$ 晶胞组成的超胞（六方坐标系，即 8640 个原子），并施加周期性边界条件。初始极化构型通过将 Ti原子从氧八面体中心沿z′方向位移来设定（在纳米畴内沿正向

位移，在基体中沿负向）。位于畴边界处单原子厚层中的 Ti原子保持在理想立方位置。

经典分子动力学（MD）模拟是对所研究体系进行结构弛豫的主要手段。为此，我们使用了 DL POLY 软件 [37]，并在恒应变–恒温系综下进行计算，时间步长为 0.4 ps，初始平衡时间为 10 ps。温度设为 1 K，以便结构在少量热噪声的作用下有效弛豫。系统持续演化数十 ps，直至时间平均的局域偶极构型不再发生变化（通常在生产运行 ~10 ps 后）。

为确认所获得的弛豫构型处于能量极小值，使用 GULP 程序 [38] 中实现的有理函数优化法对原子位置进行了优化。该方法涉及对海森矩阵进行对角化，并在优化过程中沿特征值最小的模式进行搜索。我们发现，由分子动力学得到的结构在优化过程中无需进行有意义的步骤，能量仅略微降低（每个五原子化学式单元降低 <0.1 eV）。稳定性的最终检验包括计算动力学矩阵及其特征值（同样使用 GULP），以排除任何残余的不稳定模。

根据芯与壳的位置和电荷，分别评估所选结构中每个含 5 个原子的钙钛矿晶胞的局域偶极矩。对于给定晶胞，考虑一个 Ti原子及其周围由六个 O原子构成的八面体（权重为 0.5），以及 8 个配位 Ba原子（权重为 0.125）。

参考文献和注释：

[1] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, 和 P. Böni, 《手性磁体中的斯格明子晶格》, 《科学》323, 915 (2009)。doi: 10.1126/science.1166767[2] U. K. Rößler, A. N. Bogdanov, 和 C. Pfleiderer, 《磁性金属中的自发斯格明子基态》, 《自然》442, 797 (2006)。doi: 10.1038/nature05056[3] A. Fert, N. Reyren, 和 V. Cros, 《磁性斯格明子：物理进展与潜在应用》, 《自然综述：材料》2, 17031 (2017)。doi: 10.1038/natrevmats.2017.31[4] A. Neubauer, C. Pfleiderer, B. Binz, A. Rosch, R. Ritz, P. G. Niklowitz, 和 P. Böni, 《MnSi的A相中的拓扑霍尔效应》, 《物理评论快报》102, 186602 (2009)。doi: 10.1103/PhysRevLett.102.186602[5] T. Schulz, R. Ritz, A. Bauer, M. Halder, M. Wagner, C. Franz, C. Pfleiderer, K. Everschor, M. Garst, 和 A. Rosch, 《手性磁体中斯格明子的涌现电动力学》, 《自然·物理》8, 301 (2012)。doi: 10.1038/nphys2231[6] P. Bruno, V. K. Dugaev, 和 M. Taillefumier, 《磁性纳米结构中的拓扑霍尔效应与贝里相位》, 《物理评论快报》93, 096806 (2004)。doi: 10.1103/PhysRevLett.93.096806[7] J. Zang, M. Mostovoy, J. H. Han, 和 N. Nagaosa, 《金属薄膜中斯格明子晶体的动力学》, 《物理评论快报》107, 136804 (2011)。doi: 10.1103/PhysRevLett.107.136804

[8] K. Litzius, I. Lemesh, B. Krüger, P. Bassirian, L. Caretta, K. Richter, F. Büttner, K. Sato, O. A. Tretiakov, J. Förster, R. M. Reeve, M. Weigand, I. Bykova, H. Stoll, G. Schütz, G. S. D. Beach, 和 M. Kläui, 《通过时间分辨X射线显微术直接揭示斯格明子霍尔效应》, 《自然·物理》13, 170 (2017)。doi: 10.1038/nphys4000[9] W. Jiang, X. Zhang, G. Yu, W. Zhang, X. Wang, M. B. Jungfleisch, J. E. Pearson, X. Cheng, O. Heinonen, K. L. Wang, Y. Zhou, A. Hoffmann, 和 S. G. E. te Velthuis, 《直接观测斯格明子霍尔效应》, 《自然·物理》13, 162 (2017)。doi: 10.1038/nphys3883[10] Y. Fujishiro, N. Kanazawa, T. Nakajima, X. Z. Yu, K. Ohishi, Y. Kawamura, K. Kakurai, T. Arima, H. Mitamura, A. Miyake, K. Akiba, M. Tokunaga, A. Matsuo, K. Kindo, T. Koretsune, R. Arita, 和 Y. Tokura, 《立方手性磁体中斯格明子晶格态与刺猬晶格态之间的拓扑相变》, 《自然·通讯》10, 1059 (2019)。doi: 10.1038/s41467-019-08985-6[11] N. Kent, N. Reynolds, D. Raftrey, I. T. G. Campbell, S. Virasawmy, S. Dhuey, R. V. Chopdekar, A. Hierro-Rodriguez, A. Sorrentino, E. Pereiro, S. Ferrer, F. Hellman, P. Sutcliffe, 和 P. Fischer, 《在磁性多层系统中制备并观测霍普夫子》, 《自然·通讯》12, 1562 (2021)。doi: 10.1038/s41467-021-21846-5[12] S. Zhang, F. Kronast, G. van der Laan, 和 T. Hesjedal, 《铁磁体—磁性拓扑绝缘体异质结构中斯格明子复合体的实空间观测》, 《纳米快报》18, 1057 (2018)。doi: 10.1021/acs.nanolett.7b04537 [13] M. Finazzi, M. Savoini, A. R. Khorsand, A. Tsukamoto, A. Itoh, L. Duò, A. Kirilyuk, Th. Rasing, 和 M. Ezawa, 《具有可调拓扑性质的激光诱导磁性纳米结构》, 《物理评论快报》110, 177205 (2013)。doi: 10.1103/PhysRevLett.110.177205[14] J. Barker 和 O. A. Tretiakov, 《外加电流和温度作用下反铁磁斯格明子的静态与动态性质》, 《物理评论快报》116, 147203 (2016)。doi: 10.1103/PhysRevLett.116.147203[15] C. Back, V. Cros, H. Ebert, K. Everschor-Sitte, A. Fert, M. Garst, Tianping Ma, S. Mankovsky, T. L. Monchesky, M. Mostovoy, N. Nagaosa, S. S. P. Parkin, C. Pfleiderer, N. Reyren, A. Rosch, Y. Taguchi, Y. Tokura, K. von Bergmann, 和 J. Zang, 《2020年斯格明子自旋电子学路线图》, 《物理学杂志D：应用物理》53, 363001 (2020)。doi: 10.1088/1361- 6463/ab8418[16] S. Das, Y. L. Tang, Z. Hong, M. A. P. Gonçalves, M. R. McCarter, C. Klewe, K. X. Nguyen, F. Gómez-Ortiz, P. Shafer, E. Arenholz, V. A. Stoica, S.-L. Hsu, B. Wang, C. Ophus, J. F. Liu, C. T. Nelson, S. Saremi, B. Prasad, A. B. Mei, D. G. Schlom, J. Íñiguez, P. García-Fernández, D. A. Muller, L. Q. Chen, J. Junquera, L. W. Martin, 和 R. Ramesh, 《室温极性斯格明子的观测》, 《自然》568, 368 (2019)。doi: 10.1038/s41586-019-1092-8 [17] M. A. P. Gonçalves, C. Escorihuela-Sayalero, P. Garca-Fernández, J. Junquera, 和 J. Íñiguez, 《制备和调控电斯格明子泡的理论指南》, 《科学进展》5, eaau7023 (2019)。doi: 10.1126/sciadv.aau7023[18] Y. Nahas, S. Prokhorenko, L. Louis, Z. Gui, I. Kornev, 和 L. Bellaiche, 《铁电纳米复合材料中稳定斯格明子态的发现》, 《自然·通讯》6, 8542 (2015)。doi: 10.1038/ncomms9542[19] S. Das, Z. Hong, V. A. Stoica, M. A. P. Gonçalves, Y. T. Shao, E. Parsonnet, E. J. Marksz, S. Saremi, M. R. McCarter, A. Reynoso, C. J. Long, A. M. Hagerstrom, D. Meyers, V. Ravi, B. Prasad, H. Zhou, Z. Zhang, H. Wen, F. Gómez-Ortiz, P. García-Fernández, J.

Bokor, J. Íñiguez, J. W. Freeland, N. D. Orloff, J. Junquera, L. Q. Chen, S. Salahuddin, D. A. Muller, L. W. Martin, and R. Ramesh, 极性斯格明子中的局域负介电常数与拓扑相变, 《自然·材料》20, 194 (2021年). doi: 10.1038/s41563-020-00818-y[20] R. Zhu, Z. Jiang, X. Zhang, X. Zhong, C. Tan, M. Liu, Y. Sun, X. Li, R. Qi, K. Qu, Z. Liu, M. Wu, M. Li, B. Huang, Z. Xu, J. Wang, K. Liu, P. Gao, J. Wang, J. Li, and X. Bai, 电场下极性斯格明子气泡的动力学, 《物理评论快报》129, 107601 (2022年). doi: 10.1103/PhysRevLett.129.107601[21] K. T. Kim, M. R. McCarter, V. A. Stoica, S. Das, C. Klewe, E. P. Donoway, D. M. Burn, P. Shafer, F. Rodolakis, M. A. P. Gonçalves, F. Gómez-Ortiz, J. Íñiguez, P. García- Fernández, J. Junquera, S. Susarla, S. W. Lovesey, G. van der Laan, S. Y. Park, L. W. Martin, J. W. Freeland, R. Ramesh, and D. R. Lee, X射线共振散射定量表征的电极化矢量手性结构, 《自然·通讯》13, 1769 (2022年). doi: 10.1038/s41467-022-29359-5[22] Yu. Tikhonov, S. Kondovych, J. Mangeri, M. Pavlenko, L. Baudry, A. Sené, A. Galda, S. Nakhmanson, O. Heinonen, A. Razumnaya, I. Luk'yanchuk, and V. M. Vinokur, 铁电体中可控的斯格明子手性, 《科学报告》10, 8657 (2020). doi: 10.1038/s41598-020-65291-8[23] P. Shafer, P. García-Fernández, P. Aguado-Puente, A. R. Damodaran, A. K. Yadav, C. T. Nelson, S.-L. Hsu, J. C. Wojdeł, J. Íñiguez, L. W. Martin, E. Arenholz, J. J unquera, and R. Ramesh, 钛酸盐超晶格电极化纹理中的涌现手性, 《美国国家科学院院刊》115, 915 (2018年). doi: 10.1073/pnas.1711652115[24] Y.-T. Shao, S. Das, Z. Hong, R. Xu, S. Chandrika, F. Gómez-Ortiz, P. García- Fernández, L.-Q. Chen, H. Y. Hwang, J. Junquera, L. W. Martin, R. Ramesh, and D. A. Muller, 极性半子到斯格明子相变中的涌现手性, https://arxiv.org/abs/2101.04545 (2021年).[25] S. Seki and M. Mochizuki,《磁性材料中的斯格明子》（施普林格国际出版公司，2016年）。[26] N. Nagaosa and Y. Tokura, 磁性斯格明子的拓扑性质与动力学, 《自然·纳米技术》8, 899 (2013年). doi: 10.1038/nnano.2013.243[27] I. Kézsmárki, S. Bordács, P. Milde, E. Neuber, L. M. Eng, J. S. White, H. M. Rønnow, C. D. Dewhurst, M. Mochizuki, K. Yanai, H. Nakamura, D. Ehlers, V. Tsurkan, and A. Loidl, 极性磁性半导体 GaV_4S_8, 中具有受限取向的奈尔型斯格明子晶格, 《自然·材料》14, 1116 (2015年). doi: 10.1038/nmat4402[28] P. Marton, I. Rychetsky, and J. Hlinka, 金兹堡-朗道-德文郡唯象模型下铁电 $BaTiO_3$ 畴壁的研究, 《物理评论B》81, 144125 (2010年). doi: 10.1103/PhysRevB.81.144125[29] J. C. Wojdeł and J. Íñiguez, 第一性原理揭示的铁电畴壁处铁电相变, 《物理评论快报》112, 247603 (2014年). doi: 10.1103/PhysRevLett.112.247603[30] M. Taherinejad, D. Vanderbilt, P. Marton, V. Stepkova, and J. Hlinka, 菱方晶系 $BaTiO_3$, 中的布洛赫型畴壁, 《物理评论B》86, 155138 (2012年). doi: 10.1103/PhysRevB.86.155138[31] V. Stepkova, P. Marton, and J. Hlinka, $BaTiO_3$, 铁电畴壁中的应力诱导相变, 《物理学杂志：凝聚态物质》24, 212201 (2012年). doi: 10.1088/0953- 8984/24/21/212201

[32] J. Hlinka, V. Stepkova, P. Marton, and P. Ondrejkovic, 收录于《铁性材料中的拓扑结构》，J. Seidel 编（施普林格，瑞士，2016年），第161–180页。[33] S. Tinte, M. G. Stachiotti, S. R. Phillpot, M. Sepliarsky, D. Wolf, and R. L. Migoni, 分子动力学模拟得到的 $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ 固溶体的铁电性质, 《物理学杂志：凝聚态物质》16, 3495 (2004). doi: 10.1088/0953-8984/16/20/019[34] M. Sepliarsky, A. Asthagiri, S. R. Phillpot, M. G. Stachiotti, and R. L. Migoni, 氧化物材料中铁电性的原子级模拟, Curr. Opin. Solid State Mater. Sci. 9, 107 (2005). doi: 10.1016/j.cossms.2006.05.002[35] M. Paściak, T. R. Welberry, J. Kulda, S. Leoni, and J. Hlinka, 立方 $BaTiO_3$, 中的动态位移无序, 《物理评论快报》120, 167601 (2018年). doi: 10.1103/PhysRevLett.120.167601[36] T. Hashimoto and H. Moriwake, 非晶 $BaTiO_3$ 的结构：分子动力学
s
采用壳层模型的模拟，Physica B 579, 411799 (2020). doi: 10.1016/j.physb.2019.411799
[37] I. T. Todorov、W. Smith、K. Trachenko 和 M. T. Dove，DL POLY 3：通过大规模并行拓展分子动力学模拟，J. Mater. Chem. 16, 1911 (2006)
.
doi: 10.1039/b517931a[38] J. D. Gale 和 A. L. Rohl，通用晶格程序 (GULP), Mol. Simul. 29
,
291（2003）。doi：10.1080/0892702031000104887[39] A. K. Nayak、V. Kumar、T. Ma、P. Werner、E. Pippel、R. Sahoo、F. Damay、U. K. Rößler、C. Felser 和 S. S. P. Parkin，《四方赫斯勒材料中高于室温的磁性反斯格明子》，《自然》548，561（2017）。doi：10.1038/nature23466[40] A. N. Bogdanov 和 D. A. Yabloskii，《磁有序晶体中的热力学稳定“涡旋”：磁体的混合态》，Zh. Eksp. Teor. Fiz. 95，178（1989）。[41] A. N. Bogdanov 和 C. Panagopoulos，《磁性斯格明子的物理基础与基本性质》，Nat. Rev. Phys. 2，492（2020）。doi：10.1038/s42254-020-0203-7[42] K. C. Erb 和 J. Hlinka，《结构晶体对称性破缺诱导的矢量、双矢量和布洛赫斯格明子相》，《物理评论B》102，024110（2020）。doi：10.1103/PhysRevB.102.024110[43] M. Hoffmann、B. Zimmermann、G. P. Müller、D. Schürhoff、N. S. Kiselev、C. Melcher 和 S. Blügel，《各向异性Dzyaloshinskii-Moriya相互作用在界面处稳定反斯格明子》，《自然·通讯》8，308（2017）。doi：10.1038/s41467-017-00313-0[44] B. Houchmandzadeh、J. Lajzerowicz 和 E. Salje，《序参量耦合与畴壁的手性》，《物理学杂志：凝聚态物质》3，5163（1991）。doi：10.1088/0953- 8984/3/27/009[45] P. V. Yudin、A. K. Tagantsev、E. A. Eliseev、A. N. Morozovska 和 N. Setter，《挠曲电性驱动的铁电畴壁双手性结构》，《物理评论B》86，134102（2012年）。doi：10.1103/PhysRevB.86.134102[46] P. V. Yudin、A. K. Tagantsev 和 N. Setter，《铁电畴壁的双稳态：准同型相界与应变效应》，《物理评论B》88，024102（2013年）。doi：10.1103/PhysRevB.88.024102[47] J. Harada、J. D. Axe 和 G. Shirane，《立方BaTiO中的软模的中子散射研究3,《物理评论B》4，155（1971）。doi：10.1103/PhysRevB.4.155

[48] N. Mohanta 和 E. Dagotto，《界面相挫折稳定非常规斯格明子晶体》，npj Quantum Mater. 7，76（2022年）。doi：10.1038/s41535-022-00483-1[49] D. Amoroso、P. Barone 和 S. Picozzi，《镍卤化物单层中各向异性交换对称作用产生的自发斯格明子晶格》，《自然·通讯》11，5784（2020）。doi：10.1038/s41467-020-19535-w[50] R. Ozawa、S. Hayami 和 Y. Motome，《具有高拓扑

巡游磁体中的数量，《物理评论快报》118，147205（2017）。doi: 10.1103/PhysRevLett.118.147205

[51] A. O. Leonov 和 M. Mostovoy，多重周期态及
各向异性受挫磁体中的孤立斯格明子，《自然·通讯》6，8275（2015年）。doi: 10.1038/ncomms9275

[52] M. N. Potkina、I. S. Lobanov、O. A. Tretiakov、H. J ónsson，和 V. M. Uzdin，稳定性
Mn-Pt-Sn四方赫斯勒材料中的长寿命反斯格明子，《物理评论B》102，134430（2020）。doi: 10.1103/PhysRevB.102.134430

[53] B. Dupé、C. N. Kruse、T. Dornheim， 以及 S. Heinze，如何揭示亚稳态
斯格明子自旋结构：通过自旋极化扫描隧道显微镜进行观测，《新物理学杂志》18，055015（2016）。doi: 10.1088/1367-2630/18/5/055015

[54] S. Heinze、K. von Bergmann、M. Menzel、J. Brede、A. Kubetzka、R. Wiesendanger、G. Bihlmayer 和 S. Blügel，二维中自发形成的原子尺度磁性斯格明子晶格，《自然·物理》7，713（2011）。doi: 10.1038/nphys2045

[55] S. Z. Lin、A. Saxena 和 C. D. Batista，《斯格明子分数化》与手性
具有易平面各向异性的手性磁体中的半子，《物理评论B》91，224407（2015年）。doi: 10.1103/PhysRevB.91.224407

致谢：

经费：

本研究得到捷克科学基金会的资助（项目编号：19-28594X）。

作者贡献：

JH 提出了研究范围和论文大纲；MAPG 在 MP 的指导下完成了全部模拟；所有作者讨论了研究的阶段性进展，并且都同等参与了最终手稿的撰写。

利益冲突：

作者声明不存在任何利益冲突。

数据和材料可用性：

所有数据均可在正文中查阅，也可向作者提出合理请求获取。

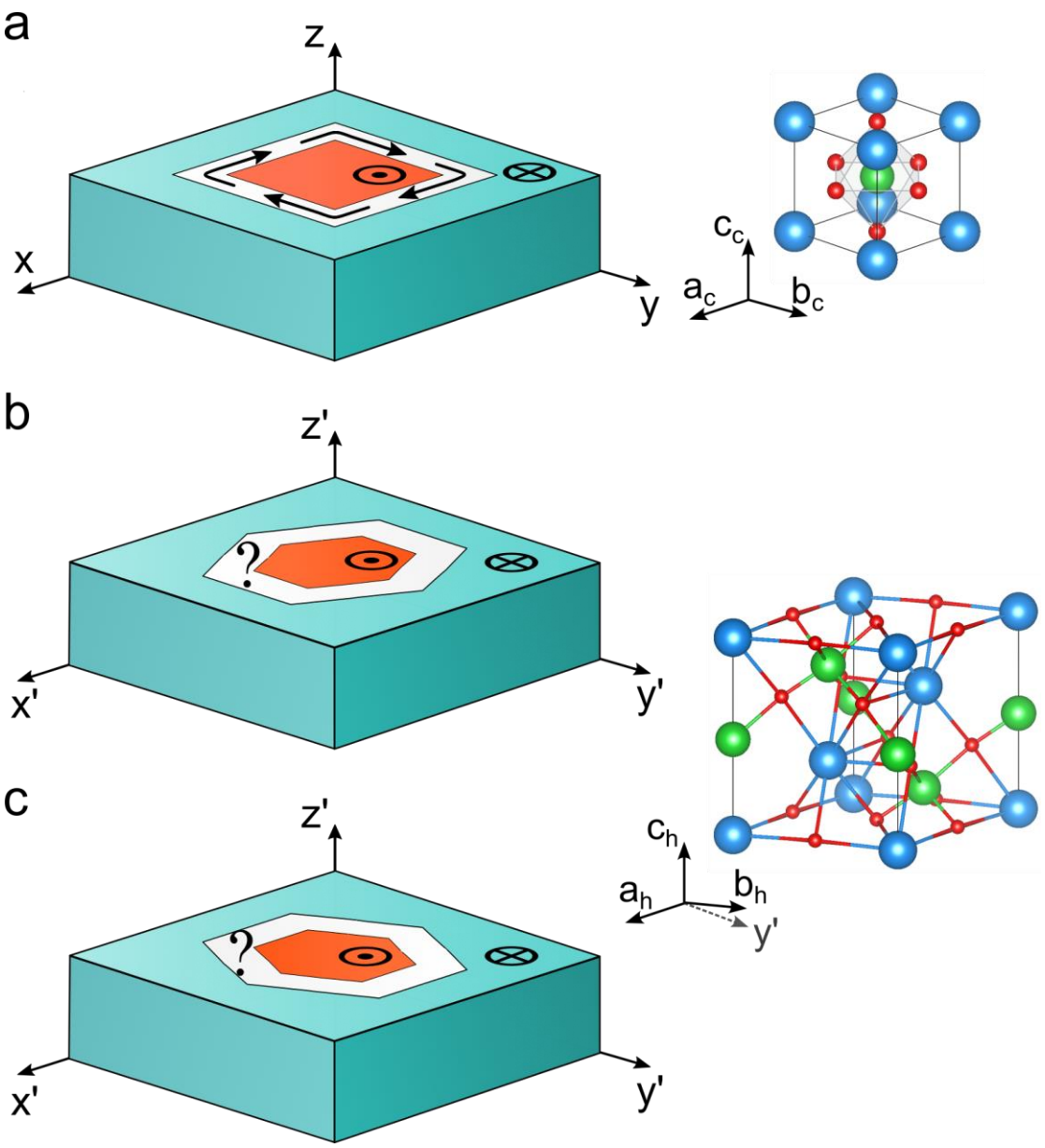

图1. $PbTiO_3$ 和 $BaTiO_3$中反平行极化的超小畴。(a) 先前研究中鉴定出的四方 $PbTiO_3$ 的典型纳米畴构型 [17]。内部区域（橙色）的极化平行于铁电 z 轴，外部区域（青绿色）的极化方向相反。畴壁区域（白色）中的黑色箭头表示内部畴壁极化，其围绕纳米畴形成一个闭合回路。(b) 菱方 $BaTiO_3$ 中纳米畴的预期形状，其铁电轴为$z' \parallel [111]$。畴壁是 {1-10}* 晶面，其中一个垂直于 x′ 轴。(c) 类似的构型，但畴壁为 {-211}* 晶面（其中一个垂直于 y′ 轴）。右上方绘出了母相立方钙钛矿晶胞的相应取向及晶格矢量 a_c、b_c 和 c_c；右下方则在菱方 $BaTiO_3$ 的六方晶胞内重新绘出了相同结构（$a_h = (0, 1, -1)$ 和 $b_h = (-1, 0, 1)$ 之间的夹角为 120 度）。蓝色球体代表 Pb 或 Ba原子，绿色球体代表钛原子，红色球体代表 O原子。

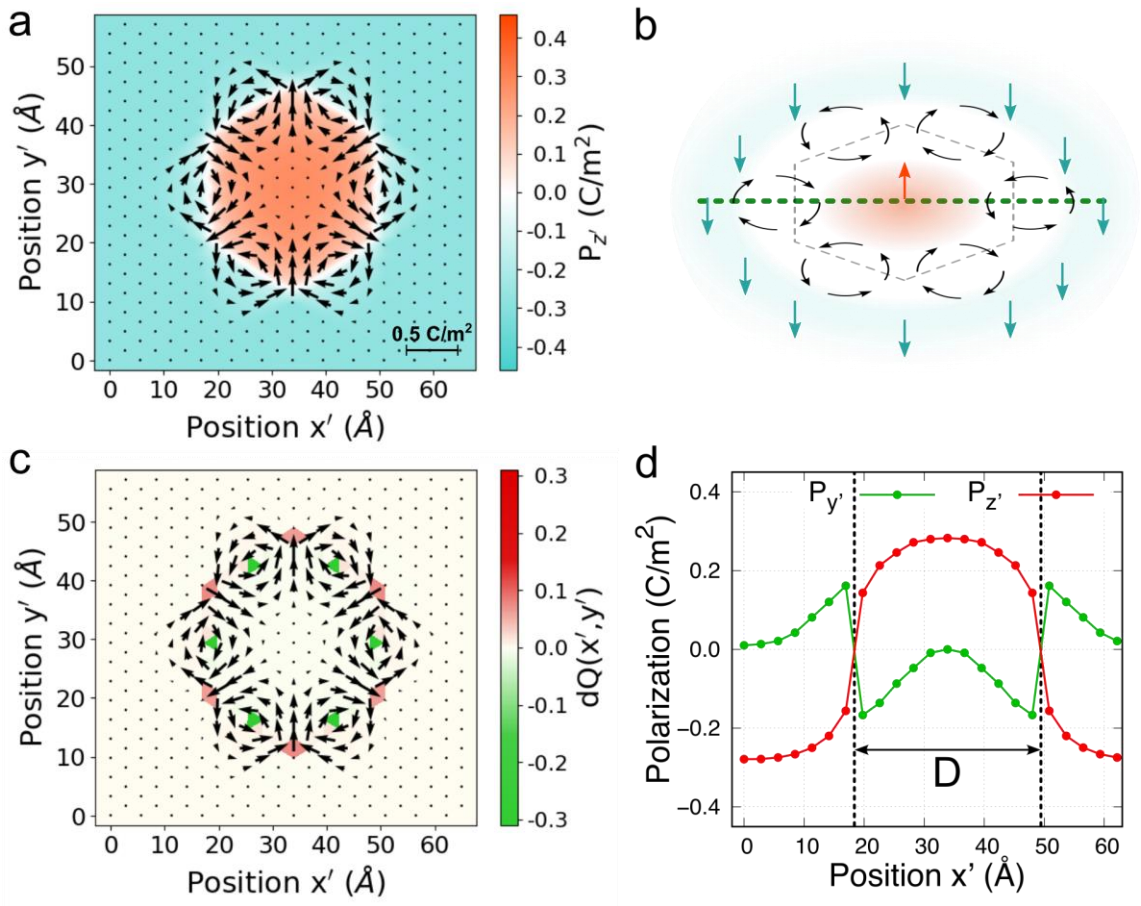

图2. 菱方 $BaTiO_3$ 中弛豫后的反斯格明子纳米畴。(a) N = 11 反斯格明子极化构型的截面，该构型由图1b所示的六边形截面的拓扑平庸泡状纳米畴经弛豫得到。计算每个 Ti 位点的局域极化，并将其投影到z'轴上。非零的面内极化分量以箭头标出，面外分量以颜色表示。(b) 相同极化图样的简化示意图。橙色和青绿色箭头分别表示纳米畴和基体。弯曲箭头表示面内极化部分的六个涡旋。(c) 叠加在面内极化上的拓扑电荷密度分布 $q(x', y')dS$。在投影后的 Ti 位置所构成的六角子晶格内，分别对每个三角形元胞计算 $q(x', y')dS$的值。(d) 沿(b)图绿色虚线的横向极化分量 $P_{x'}$, $P_{z'}$ ，并标出了斯格明子尺寸 D。

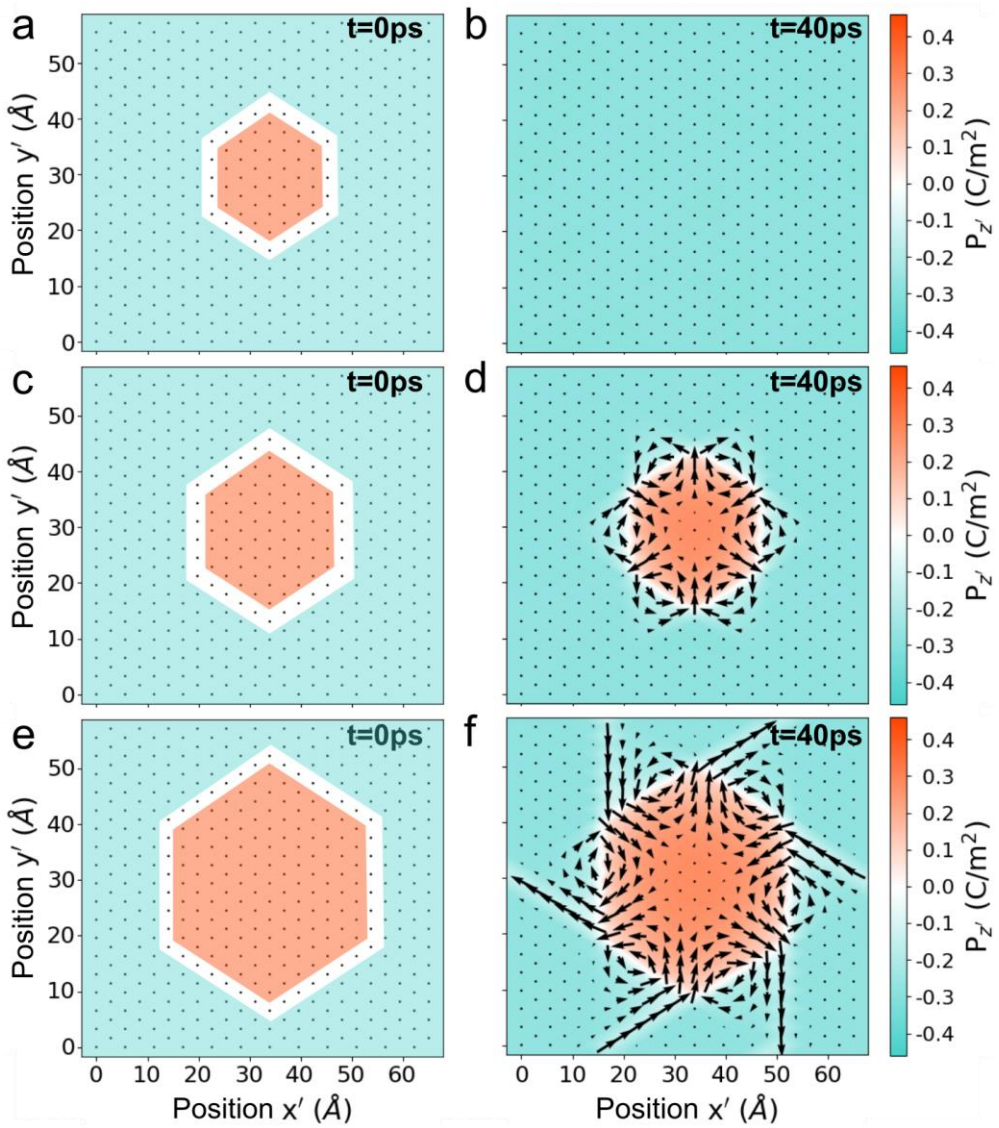

图 3. 不同尺寸反斯格明子的形成。左侧面板（a、c、e）显示具有拓扑平庸共线极化构型的初始纳米畴。从上到下，尺寸参数分别为 N = 7、N = 9 和 N = 13。右侧面板（b、d、f）显示在 T = 1 K 下经过 40 ps 分子动力学弛豫后的相应构型。

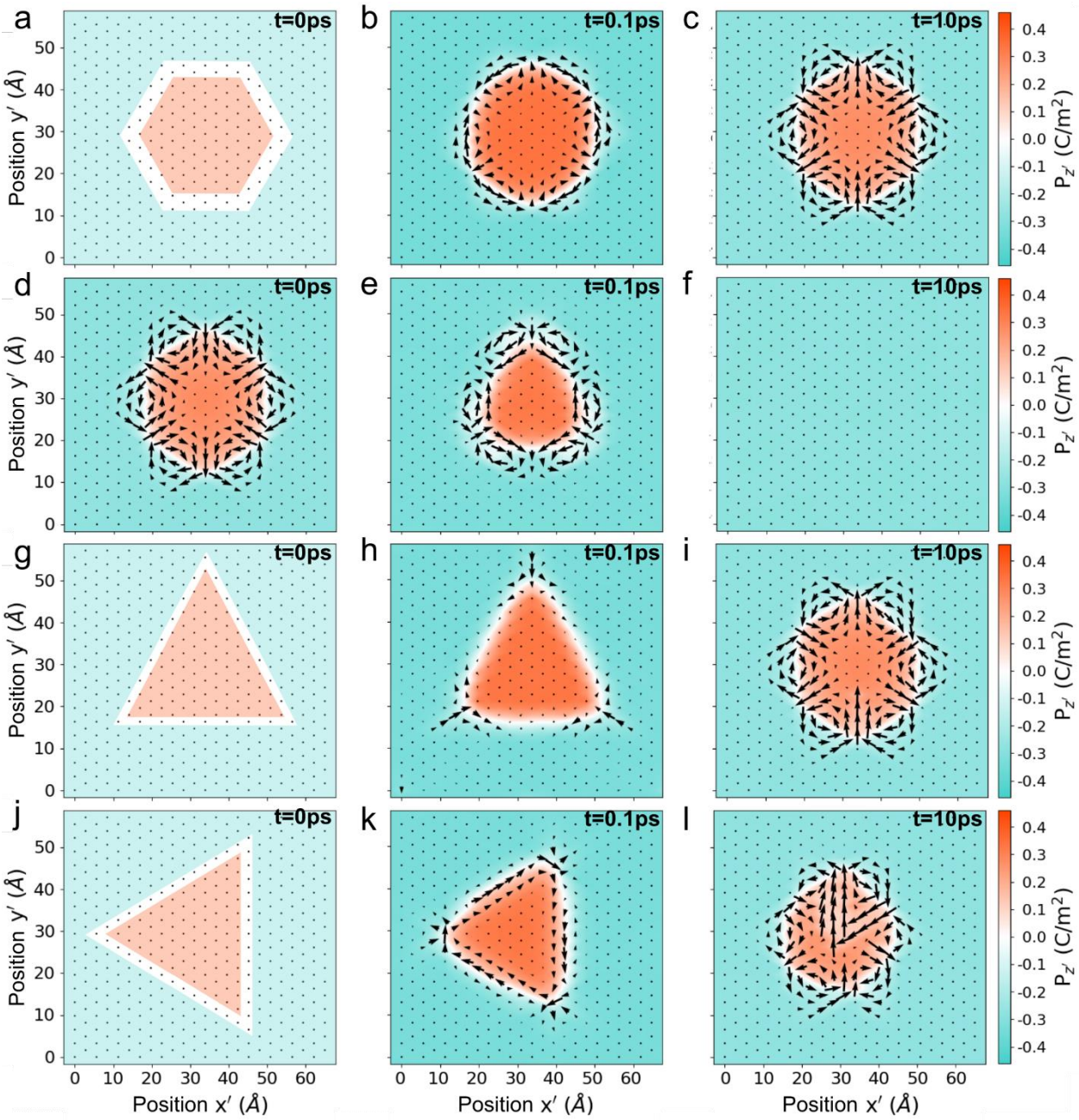

图4. 其他初始构型的衰变。左侧面板显示初始构型，中间面板显示分子动力学演化 0.1 ps 后的结构，右侧面板显示分子动力学演化 10 ps 后记录的接近平衡的最终构型。(a、b、c)——含有 R180{-211}畴壁的构型转变为含有 R180{01-1}畴壁的构型。(d、e、f)——类似于图 2a 但面内极化反向的构型衰变为单畴。面板 (g、h、i) 和 (j、k、l) 分别展示了含有 R180{-211} 和 R180{01-1}畴壁的共线构型的演化。