

专题: 华南师范大学建校暨物理学科建立 90 周年

# “针尖下的实验室”——扫描探针探测与调控铁电畴及其微观物性\*

田国<sup>1)</sup> 樊贞<sup>1)</sup> 陈德杨<sup>1)</sup> 侯志鹏<sup>1)</sup> 刘俊明<sup>1)2)</sup> 高兴森<sup>1)†</sup>

1) (华南师范大学, 华南先进光电子研究院, 先进材料研究所及量子调控工程与材料广东省重点实验室, 广州 510006)

2) (南京大学, 固体微结构物理国家重点实验室, 南京 210093)

(2023 年 6 月 7 日收到; 2023 年 7 月 25 日收到修改稿)

铁电和多铁材料作为未来高性能信息媒介引起广泛关注. 其中铁电畴的形态及演化特征可显著影响材料电导、光伏、磁电耦合等诸多物理性能以及器件功能, 尤其是新奇拓扑畴带来诸多新颖物性, 使得通过畴调控方法设计材料及器件性能成为可能. 深入理解铁电畴及其微观物性调控规律有望为后摩尔时代信息技术带来新的器件设计方案. 本文主要介绍通过多功能扫描探针显微镜研究铁电和多铁材料的微观畴结构和相关物理性能, 及其调控规律和机制, 并在此基础上构筑新原理信息器件.

**关键词:** 扫描探针显微镜, 铁电畴, 拓扑畴, 电场驱动磁翻转, 信息存储器件**PACS:** 75.85.+t, 75.60.Jk, 77.80.-e, 77.90.+k**DOI:** 10.7498/aps.72.20230954

## 1 引言

铁电和多铁性材料蕴含着丰富多彩的物理性能, 因此被广泛应用于数据存储、传感、通信、能源等领域<sup>[1–3]</sup>. 铁电畴可以在原子尺度稳定存在, 畴翻转可达到皮秒级速度和飞焦级低能耗, 还具抗辐射性能, 因此在高性能信息器件应用有巨大潜力<sup>[4]</sup>. 然而, 传统铁电存储器受限于极化电流读出机制, 需要足够大的器件尺度, 难以发挥其高密度和低能耗的潜力. 为解决这一难题, 急需发展更新的极化畴状态读出方案. 一种可能方案是通过电流或光电流读出构筑器件, 如铁电阻变/光伏存储与类脑器件. 还有一种通过磁电耦合的方法, 实现电场调控磁性, 再通过磁输运手段读出, 如磁电存储器 (magnetoresistive random access memory, MRAM) 或磁电-自旋轨道逻辑器件 (magnetoelectric-spin orbit

coupling logic, MESO logic) 等<sup>[5,6]</sup>. 这些新原理器件方案有望突破传统铁电信息器件瓶颈, 从而实现高速、高密度、低能耗的新一代信息技术.

随着铁电畴研究的深入, 一些新颖的纳米尺度畴结构和新物理也被更多揭示出来. 近年来, 在纳米尺度铁电结构里, 揭示出一些拓扑缺陷, 如二维缺陷畴壁, 以及更为复杂的泡状畴 (bubble)、拓扑保护的涡旋畴 (vortex) 及中心畴 (center) 等<sup>[7–15]</sup>. 这些发现为进一步探索其中所蕴含的新奇低维物性创造了条件, 并为开发高性能的拓扑电子学器件提供了新途径.

由于铁电和多铁性材料物理性能与铁电畴的形态及结构演变密切相关, 通过对畴结构的调控, 可有效影响局域能带、电导、磁性和光学性能等<sup>[16–21]</sup>. 因此针对微观畴结构及其性能调控展开深入研究, 有望为后摩尔时代的高性能信息媒介材料与信息器件提供新途径. 这些研究离不开纳米尺度畴结构

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFB3807603)、国家自然科学基金 (批准号: U22A20117, 52002134, 92163210)、广东省科技计划 (批准号: 202201000008) 和“香江学者”计划 (批准号: XJ2022004) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xingsengao@scnu.edu.cn

和微观物理探测与调控手段. 为此, 本课题组发展了基于多功能扫描探针 (见图 1) 的微观多物性观测与多场调控方法, 在纳米尺度探测电畴、磁畴、以及输运性能、表面电势等, 还通过多种外场 (电、磁、力、热、光等) 激励调控畴结构和相关物性, 揭示其微观机制, 并在此基础上探索器件用途. 这些研究大多在原子力针尖下完成, 因此戏称为“针尖下的微观物性探索实验室”.

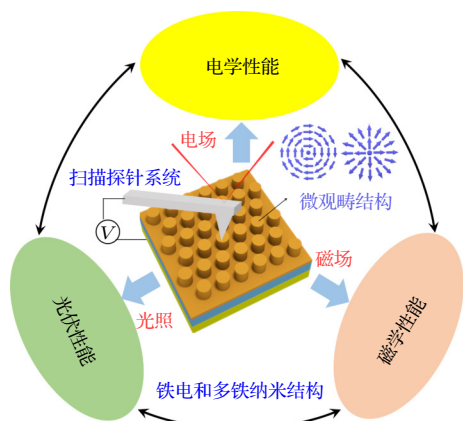


图 1 基于多功能扫描探针的微观多物性观测与多场调控系统

Fig. 1. A sketched experimental system based on scanning probe microscopy that enables the probing and tailoring of multi-functionalities and properties under multi-fields/stimuli.

## 2 铁电畴及输运特性调控

在铁电薄膜异质结中, 铁电的极化行为可以影响其输运行为. 例如, 通过改变界面肖特基势垒, 影响异质结的输运行为, 可导致铁电阻变效应或铁电隧穿效应<sup>[22–25]</sup>. 利用这些效应可以实现非破坏的读出铁电极化方向, 用于设计非易失性的铁电电阻式存储器件或类脑器件, 为突破铁电存储器的容量瓶颈和能耗提供一种新方案<sup>[26]</sup>. 当前电阻式存储结构简单, 集成度高, 成为极具潜力的新一代存储器. 然而, 大多基于缺陷形成的导电通道稳定性较低, 难以实现稳存储. 而铁电极化调控的阻变行为, 具备与铁电类似的稳定性, 有望解决这一问题, 因此引起广泛关注.

另外一方面, 铁电材料还会产生与极化相关的内建电场 (如退极化场), 为光生载流子的分离提供驱动力, 从而产生稳定的光伏电压和电流, 称为铁电光伏效应<sup>[27–30]</sup>. 铁电极化能够产生可受电场调

控的光伏效应, 有望用于构筑新概念信息器件, 如电写-光读的存储方式, 或用于实现神经元突触器件, 如“感-存-算”一体化器件. 为实现这一目标, 首先是实现微区铁电畴的构筑与调控, 并进一步调控其阻变和光伏效应, 为探索器件应用打下基础.

### 2.1 微区畴结构的探测与调控

近年来, 研究人员发展了多种微区铁电畴结构探测技术. 例如, 使用高分辨压电响应力显微镜和球差校正的高分辨透射电子显微镜能够观察铁电材料中的原子尺度的极化畴<sup>[11–14]</sup>; 也有利用超高真空的扫描隧道显微镜在单原子层及超薄的二维铁电材料中观测到纳米级铁电畴<sup>[31,32]</sup>. 比较常用的是利用原子力的压电响应力显微镜 (piezoresponse force microscopy, PFM) 实现铁电畴的探测, 通过扫描探针的悬臂形变来反映不同畴结构的压电信号, 如图 2(a) 所示. 与透射电子显微镜或扫描隧道显微镜相比, PFM 的分辨率更低 (达到纳米尺度), 但由于操作简便、非破坏性, 还可在测试电畴时候同时检测其他物性 (如导电性), 因此得到较多应用, 这也是本课题组采用的主要手段. 图 2(b), (c) 展示了用脉冲激光沉积 (pulsed laser deposition, PLD) 方法制备的外延钛酸钡 ( $\text{BaTiO}_3$ :BTO) 超薄膜的面外压电信号图像, 其中不同相位衬度显示上下极化方向, 而振幅衬度显示压电信号强弱<sup>[33]</sup>. 利用双频追踪模式, 可以放大压电信号, 几纳米厚度薄膜也可获得质量较好的信号. 而通过翻转压电力谱显微镜 (switching spectra PFM, SSPFM), 可获得特定区域每一像素的压电-电压曲线, 然后通过拟合压电曲线重构矫顽场与翻转电压分布图. 如图 2(d) 所示, 在含导电氧化铅纳米岛电极的钛酸铅薄膜异质结 ( $\text{PbO}_2/\text{Pb}(\text{ZrTi})\text{O}_3/\text{SrRuO}_3\text{:PO/PZT/SRO}$ ) 中, 观察到有氧化铅纳米岛的薄膜的平均矫顽场相比较于外围的薄膜偏低, 说明纳米导电电极可降低局部翻转电压<sup>[34]</sup>.

PFM 还可通过检测悬臂扭曲同时探测面内的压电信号, 进而探究畴结构及其调控机制. 以外延铁酸铋薄膜 ( $\text{BiFeO}_3$ , BFO) 为例, 通过 PFM 可以观测到清晰的条带畴 (而面外显示单一衬度), 如图 2(e) 所示. 由于菱方相 BFO 铁电体只有 8 个可能的极化方向, 通过分析可以确定这是典型的  $71^\circ$  条带畴. 如果在 BFO 薄膜下方插入介电层 (掺 La 的 BFO:LBFO), 可在面内观测到更细的条带畴,

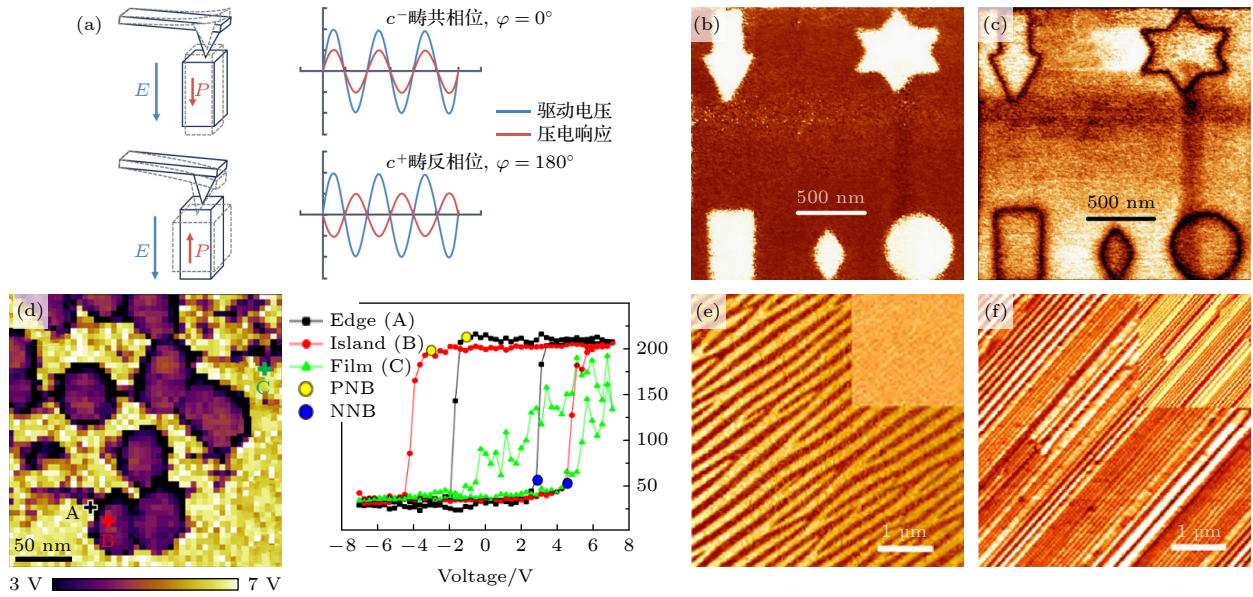


图 2 铁电畴结构探测 (a) 压电力显微镜原理示意图; (b), (c) 通过扫描探针的针尖在超薄 BTO 薄膜施加 3 V 图案化电压后的 PFM 相位与振幅图<sup>[33]</sup>; (d) 自组装 PbO<sub>2</sub>/PZT/SRO 薄膜-纳米岛中测得的 SSPFM 图像及对应 3 个区域的压电响应曲线, A 为纳米岛边缘, B 为纳米岛中心, C 为薄膜区域<sup>[34]</sup>; (e), (f) 随着插入层厚度的增大, BFO/LBFO/SRO/DSO 薄膜面内和面外 (右上插图) PFM 图像; (e) 71° 条带畴, 没有 La 掺杂 BFO 插入层; (f) 109° 畴, 10 nm 厚的 La 掺杂 BFO 插入层<sup>[35]</sup>

Fig. 2. Measurement of ferroelectric domain structures: (a) Schematic diagram of piezoelectric response force microscope; (b), (c) piezoresponse phase and amplitude images for the ultra-thin BTO film, in which the bright/dark contrast were poled by applying 3 V through AFM tip using a predefined pattern<sup>[33]</sup>; (d) SSPFM mapping for the PbO<sub>2</sub>/PZT/SRO film-island structure, and piezoresponse loops for three typical locations: Island edge A, center of an island B, naked film C, respectively<sup>[34]</sup>; (e), (f) in-plane and out-of-plane PFM images of BFO/LBFO/SRO/DSO films, (e) pure 71° domains without LBFO layer, (f) pure 109° domains with 10 nm LBFO layer<sup>[35]</sup>.

面外衬度也是条带畴, 则可以判断其为 109° 条带畴, 见图 2(f). 这些不同条带畴主要是弹性能、畴壁形成能、退极化能相互竞争的结果. 当退极化被较好屏蔽时, 容易形成 71° 条带畴, 而插入介电层则退极化能作用较大程度地增加, 形成 109° 条带畴, 如图 2(e), (f) 所示<sup>[35]</sup>.

## 2.2 微观阻变和光伏特性

铁电阻变和光伏特性有望用于构筑低能耗且稳定性高的存储或类脑器件, 引起广泛关注. 其中大多研究主要集中于宏观阻变现象, 对微观阻变现象和机制研究较少. 针对铁电阻变器件的微型化和高密度需求, 将 PFM 与导电原子力显微镜 (conductive atomic force microscopy, CAFM) 相结合, 探测其微观阻变行为和光伏行为.

例如 Lu 等<sup>[36]</sup> 利用多孔氧化铝掩模版辅助脉冲激光沉积生长技术在原子级平整的 BFO 薄膜表面 (厚度 < 10 nm) 沉积了纳米 Pt 电极阵列, 形成 Pt/BFO/SRO 纳米铁电电容器 (横向尺寸 ~60 nm), 并观测其微观畴结构和导电性, 如图 3(a), (b) 所

示. 这种 Pt/BFO/SRO 纳米铁电电容器显示出可翻转的压电信号, 并在纳米电极区域测得较强导电信号. 通过探针定点施加电压可探测纳米电容的  $I-V$  曲线, 表现出明显对称且可切换的二极管式整流行为, 并具有 ~1000 的阻变开/关比和较长稳定保持时间, 显示出制作每英寸 100 Gbit 级高密度阻变存储器件的潜力. 深入分析其微区  $I-V$  曲线, 其中铁电极化翻转有效地改变界面肖特基势垒, 进而显著改变在同一电压下的电阻态. 利用 CAFM 测试发现了电极上具有明显增强的电流信号, 有望应用于高密度集成电阻式存储器件. 除外, Gao 等<sup>[33]</sup> 还利用 Ag 团簇技术, 在超薄 BTO 薄膜上制备了约 20 nm 尺度的纳米电极, 并观测到铁电隧穿效应的阻变行为. 在薄膜中自组装形成的 BFO/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 超小纳米电容器 (最小到 10 nm 尺度) 中观察到明显的阻变现象, 显示出铁电阻变在超高密度存储应用的潜力<sup>[37]</sup>.

通过导电原子力显微镜测试在光照下产生的光伏电流, 可以有效探测微区光伏效应. Lu 等<sup>[38]</sup> 在四方相 BFO(T-BFO) 薄膜表面沉积了微米级金



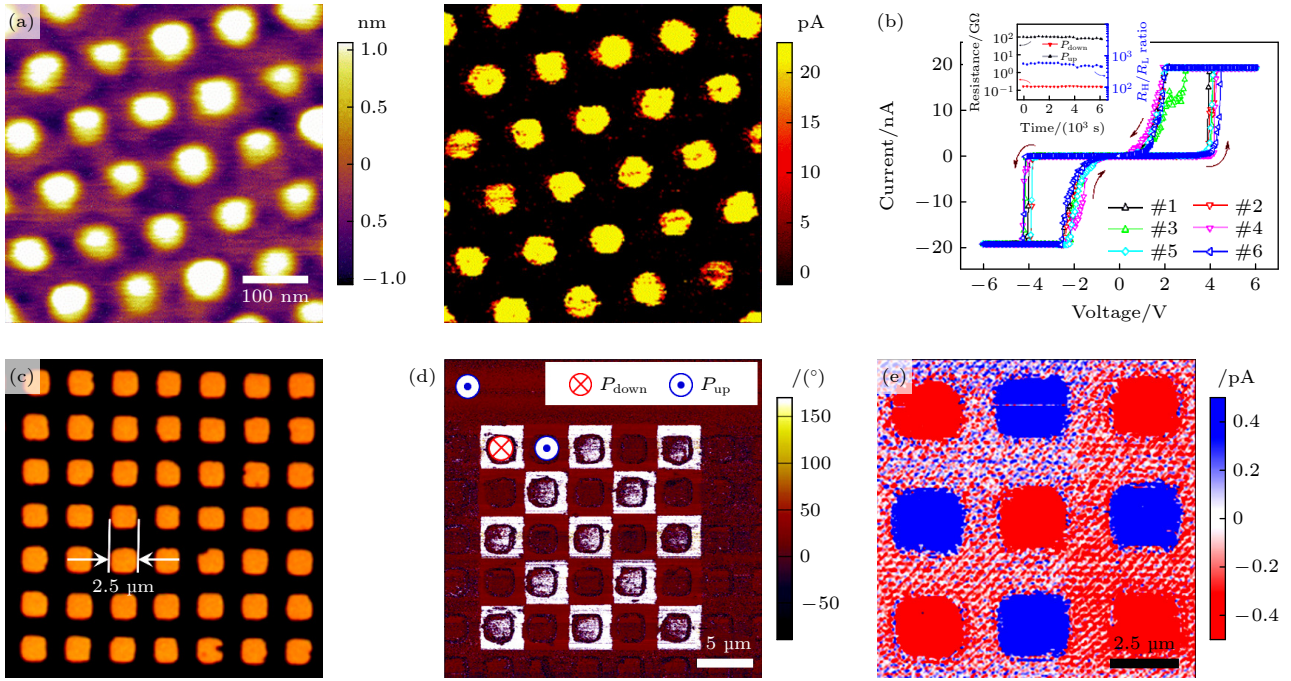


图3 铁电阻变与光伏效应 (a) Pt/BFO/SRO 纳米电容器阵列的形貌和导电原子力显微镜图像<sup>[36]</sup>; (b) Pt/BFO/SRO 纳米电容器的电流-电压多次循环回路, 左上为纳米电容器阻变开关比保持特性曲线<sup>[36]</sup>; (c) Au/Ti/T-BFO/LSMO 微米器件阵列的光学显微镜图像<sup>[38]</sup>; (d) Au/Ti/T-BFO/LSMO 微米器件阵列的 PFM 相位图, 其中亮区表示极化朝下, 暗区表示极化朝上<sup>[38]</sup>; (e) 导电原子力显微镜测得微米电极上的光电流图像<sup>[38]</sup>

Fig. 3. Ferroelectric resistive switching and photovoltaic effect: (a) Topography and CAFM current mapping of Pt/BFO/SRO nanocapacitor arrays<sup>[36]</sup>; (b)  $I$ - $V$  hysteresis loops measured for multiple cycles (Inset top shows retention properties of a typical nanocapacitor<sup>[36]</sup>); (c) optical image of the microarray derived from Au/Ti/T-BFO/LSMO<sup>[38]</sup>; (d) ferroelectric phase images recorded by PFM, bright contrast represents polarized-down ( $P_{\text{down}}$ ) state, and dark contrast represents polarized-up ( $P_{\text{up}}$ ) state<sup>[38]</sup>; (e) photocurrent image of a microarray scanned by CAFM<sup>[38]</sup>.

属电极, 形成微电容阵列, 然后结合扫描探针技术、紫外光源和高精度源表, 观察到极化调控光伏现象. 如图 3(c)–(e) 所示, 可以清楚看到极化方向改变影响光电流方向. 通过拟合微区  $I$ - $V$  曲线可知, 这种光伏效应主要源自退极化和界面内建电场共同作用. Fan 等<sup>[39]</sup> 还在 T-BFO 超薄膜上生长 Au 纳米电极从而形成纳米电容结构, 观测到兼具铁电隧穿行为的阻变以及可调控的光伏效应现象. 其中, 在 4 nm 厚的铁电薄膜上观察到开关电阻变化大于  $10^4$ , 以及高稳定性等特征. 这种阻变及光伏现象, 表现出优秀的可控性, 快速响应性, 及稳定性的存储功能, 为开发新一代光电信息器件, 如“存储-计算”一体, 或“传感-计算-存储”一体的类脑器件打下基础.

### 2.3 铁电类脑突触器件

利用铁电极化对电阻态/光伏电流的多级调控, 可用于构筑忆阻/光电突触, 并进一步构筑人

工神经网络, 用于实现识别或预测的功能<sup>[40–45]</sup>. 这种类脑器件有望用于构建“存储-计算”一体或“传感-计算-存储”一体等新架构, 从而克服传统“存储-计算”分离架构的低速、高能耗等问题, 实现更高效率的计算功能<sup>[46,47]</sup>.

为此, Chen 等<sup>[45]</sup> 利用铁电阻变效应构筑了突触器件, 并借助铁电印刻效应调控极化动力学, 获得了易失和非易失两种铁电阻变器件. 以二者分别作为储备池和读出层核心单元, 构建了全铁电储备池计算硬件系统 (图 4(a), (b)). 在该系统中, 易失性铁电阻变器件的短期记忆和非线性保障了丰富的储备池状态, 进一步采用时分复用的虚拟节点方法提升了状态丰富程度和反馈强度; 而非易失性铁电阻变器件则提供了稳定的多电导态用于映射读出层权重. 该系统成功演示了曲率识别 (图 4(c))、数字识别、波形分类和混沌序列预测等任务, 并展现出优异的识别性能. 特别地, 在混沌序列预测中取得了超低预测误差 ( $\text{NRMSE} = 0.017$ ), 长期稳

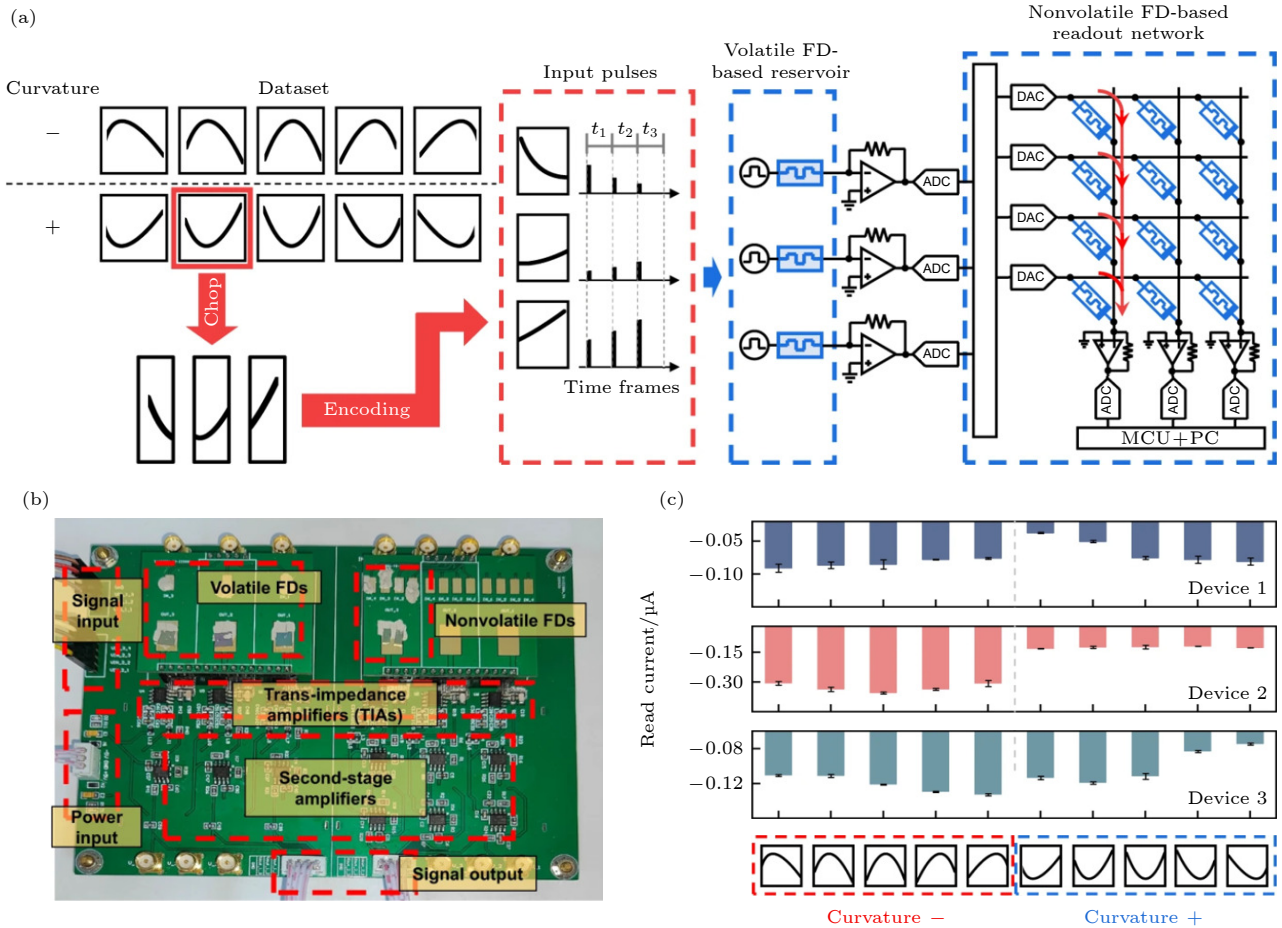


图 4 (a) 全铁电储备池计算系统的电路图, 其中易失性和非易失性铁电电阻变器件分别用于构建储备池和读出层; (b) 全铁电储备池计算系统的实物图; (c) 曲率识别任务中不同曲线输入后获得的储备池状态<sup>[45]</sup>

Fig. 4. (a) A schematic flow of the curvature discrimination task implemented on the all-ferroelectric reservoir computing system, in which the reservoir and readout network are implemented with volatile and nonvolatile ferroelectric diodes, respectively; (b) photo of the experimentally constructed all ferroelectric reservoir computing system; (c) the reservoir states after presenting different curves in the curvature discrimination task<sup>[45]</sup>.

定性、高耐久性和低功耗等优点, 这表明全铁电储备池计算系统有望成为一种准确、可靠、低功耗的类脑时序信息处理硬件。

此外, Cui 等<sup>[43]</sup> 还提出并制备了一种基于光伏读取的新型铁电类脑器件, 即铁电光伏突触 (图 5(a)). 该器件利用受极化调控的光伏效应和极化逐渐翻转技术, 实现了多级、非易失、正负对称可调的光电流。进一步在实验上构建了“传感-计算-存储”一体神经网络电路 (图 5(b)), 实现了图像实时感知与处理, 获得高准确率 (二分类图案识别准确率达 100%, 见图 5(d); 边缘检测 F-Measure 达 1)、低延时 ( $\mu\text{s}$  量级) 及低能耗 (推理过程零能耗) 等优异的性能。这些成果为发展高稳定性和可控性的铁电类脑器件提供了一些新思路, 也为开发“传感-计算-存储”一体类脑芯片提供了一种新的硬件基

础, 有望应用于下一代机器视觉系统的硬件方案中。

### 3 铁电拓扑畴

铁电畴结构可通过尺寸效应来调控, 由于边界与退极化能、应变能, 以及极化梯度能的相互作用, 可诱导产生一些与常见的畴结构不同的复杂性拓扑结构, 已成为当前的研究热点<sup>[7-10]</sup>。“拓扑”原是一个数学概念, 指的是几何图形或空间在连续改变形状后保持不变的性质。这一概念被引入到凝聚态物理领域后, 留下了浓墨重彩的一笔, 引起大量新物理现象和新拓扑材料体系的发现, 也为未来拓扑电子学器件打开了大门。因此, 2016 年诺贝尔物理学奖被授予了在该领域的三位开创者。在铁电材料中常见的拓扑结构为铁电畴壁 (二维拓扑缺陷), 表现出例如导电增强等诸多新颖物理现象<sup>[16]</sup>。



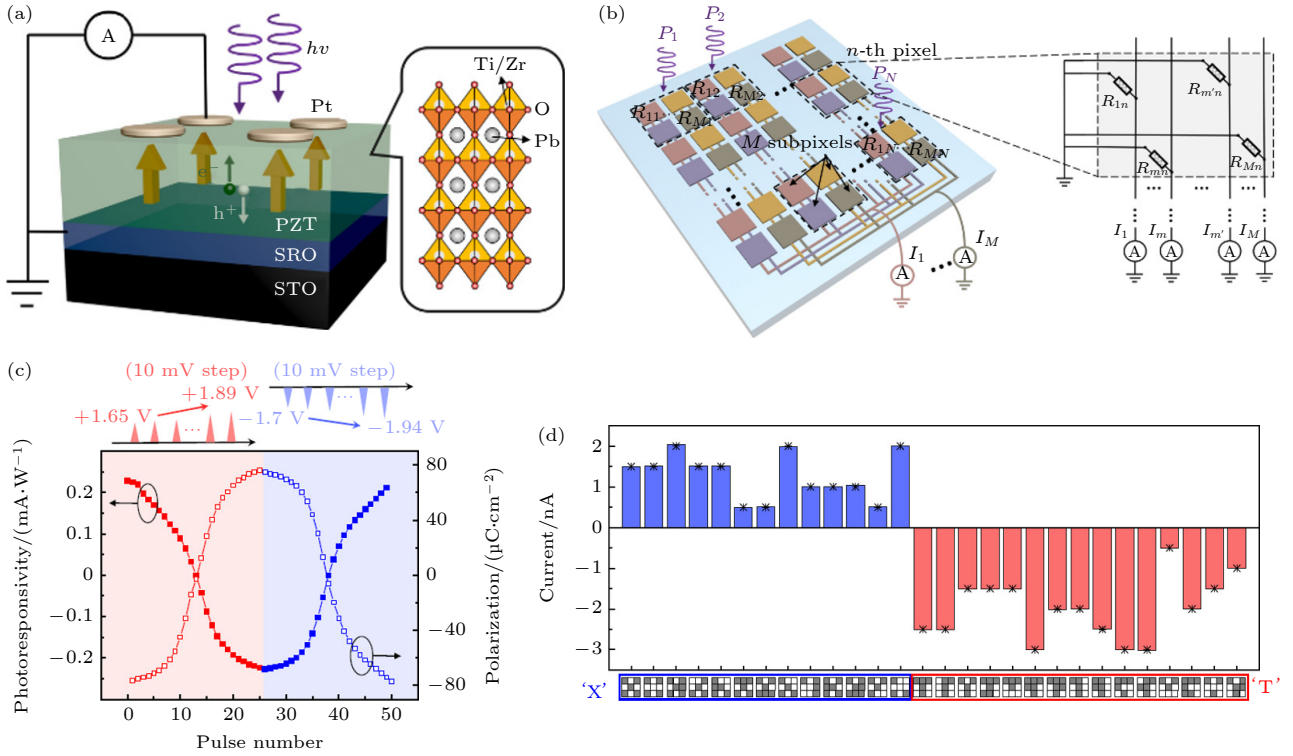


图 5 (a) 铁电光伏突触器件示意图; (b) “传感-计算-存储”一体神经网络电路示意图; (c) 器件的长期增强和抑制特性, 其中光响应度表示权重; (d) 图像识别任务中不同图像输入时获得的输出电流, 理论值用“星号”符号表示<sup>[43]</sup>

Fig. 5. (a) Schematic diagram of ferroelectric photovoltaic synapse; (b) schematic illustration of the architecture of the ferroelectric photosensor network; (c) long-term potentiation and depression characteristics of the device, where the photoresponsivity represents the weight; (d) output currents during the presentations of different input patterns. The theoretical values are indicated by the “star” symbols<sup>[43]</sup>.

近年来, 得益于先进的透射电镜技术的发展, 一些更为复杂的铁电拓扑畴, 如涡旋<sup>[11,12,15]</sup>、中心畴<sup>[13, 48-49]</sup>、斯格明子<sup>[14]</sup>、麦韧<sup>[50]</sup>等拓扑态相继被发现. 这些发现为进一步探索其中所蕴含的新奇低维物性创造了条件, 并为开发高性能的拓扑电子学器件提供了新途径. 有预测表明, 双稳态涡旋畴可在小至 3 nm 尺度稳定存在, 有望实现每英寸 60 Tb 的超高密度信息存储<sup>[51]</sup>. 目前, 众多铁电拓扑畴已被发现, 但其潜在新奇物性及器件用途还鲜有报道, 是待挖掘的富矿. 下文主要介绍利用扫描探针针对铁电拓扑畴及其导电特性进行观测与调控, 并探索基于拓扑畴的器件应用潜力.

### 3.1 铁电拓扑畴的探测与调控

为确定这些复杂性畴结构, 需要使用更复杂的转角矢量压电力显微镜测试方法. 因为在复杂性畴结构中, 难以通过一次测试获得其准确的面内极化方向 (面内 PFM 只能获得垂直悬壁方向的信号), 因此需要综合分析不同角度的 PFM 分量才能确定

其极化方向. 以纳米岛内具有的中心型拓扑畴为例, 如图 6(a) 所示. 首先通过扫描不同角度的面内压电响应信号 ( $\text{amplitude} \cdot \cos(\text{phase degree})$ ), 然后提取图中每个像素点的压电信号随角度变化曲线, 便可拟合出面内极化方向<sup>[52]</sup>. 最后根据每个像素点的面内和面外极化分量便可重构三维空间极化分布状态. 在 BFO 材料中, 通过针尖沿样品两个晶面 [010] 和 [100] 方向测试 PFM 数据, 也大致重构其极化矢量分布. 这种转角 PFM 测试方法虽然精度不如透射电子显微镜技术, 但操作更为方便, 且不会对样品造成损伤.

利用 3 个方向的转角 PFM 测试技术, Li 等<sup>[13]</sup>将 BFO 薄膜刻蚀成小尺寸的纳米岛阵列 (直径 ~60 nm), 观察到自发形成中心型拓扑畴 (其面内畴表现为中心发散和中心收敛, 以及发散和收敛不同的类型), 如图 6(b) 所示. 纳米岛中稳定存在发散、收敛、以及兼具发散-收敛等类型的拓扑畴, 并可通过外场驱动实现发散和收敛的两种中心拓扑畴之间相互切换, 显示可用单个纳米岛作为信息存

储单元的可能. 然而, 这种中心型畴会形成头对头或尾对尾的带电极化中心, 通常带来巨大的静电能, 理论上难以稳定存在. 通过热离子探针观测和相场

模拟结合, 表明源于材料内部的离子缺陷、电子、空穴等可以吸附临近带电畴壁的电荷, 通过汇聚(发散)中心的电荷富集屏蔽静电场来提升其稳定性.

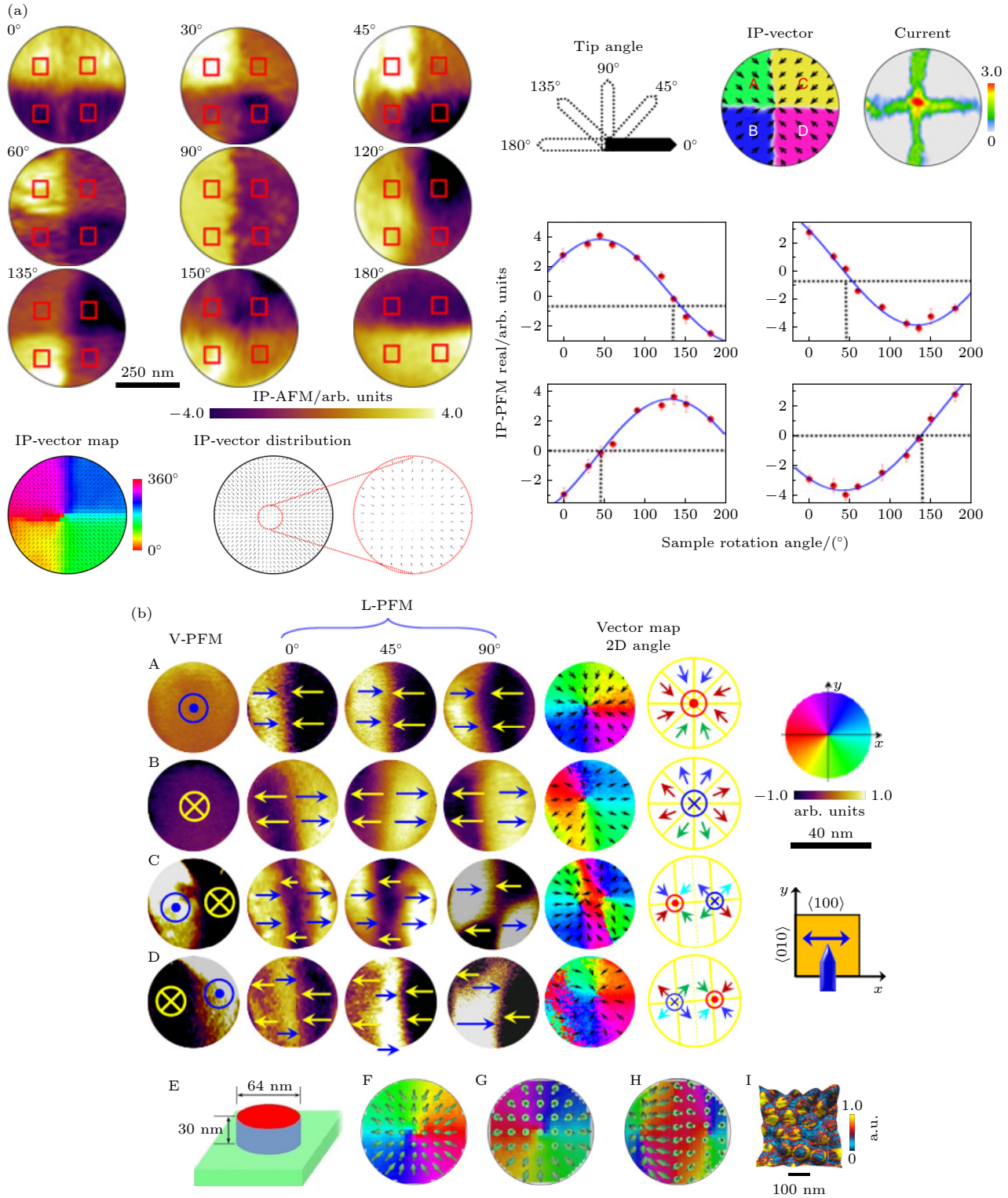


图 6 铁电拓扑畴结构 (a) 角度分辨的矢量 PFM 技术用于重构中心型拓扑畴的极化分布图像<sup>[56]</sup>; (b) BFO 纳米点中的一些典型拓扑畴的矢量 PFM 图像及理论模拟示意图<sup>[13]</sup>

Fig. 6. Ferroelectric topological domains: (a) The angle-resolved lateral PFM images used to reconstruct the polarization vector map for a selected center domain state<sup>[56]</sup>; (b) vector PFM images and vector maps, along with the simulated contours for some typical topological domains in the BFO nanodots<sup>[13]</sup>.



此外, Tian 等<sup>[53]</sup>在模板辅助 Ar 离子束刻蚀的 BFO 纳米岛 (直径~400 nm) 中观察到了零星的四象限涡旋与反涡旋对. 与上述中心型拓扑畴相比, 该样品缺陷浓度较小, 其退极化场被屏蔽程度更小, 因此更容易驱动形成电中性的涡旋型拓扑畴.

除了电荷能够稳定中心型拓扑畴结构外, 纳米结构中应变梯度也可以驱动形成中心型拓扑畴<sup>[48]</sup>. Tian 等<sup>[54]</sup>提出了一种模板辅助生长策略, 在 SRO 底电极上刻蚀获得圆形 SRO 纳米岛阵列, 然后用 PLD 在其上生长 BFO 薄膜, 可以自组装形成的方形 BFO 纳米岛-薄膜结构. 由于纳米岛中界面弯曲, 引起 BFO 纳米岛中应变不均匀分布从而产生挠曲电, 也可诱导形成中心型拓扑畴结构. 这类中心型拓扑畴同样能够通过施加电场实现发散和收敛两态之间可逆切换, 展示了作为信息存储单元的可能性.

此外, 为寻找不同铁电材料体系中的铁电拓扑畴, 在菱方相的锆钛酸铅 ( $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.3}, \text{Ti}_{0.7})\text{O}_3$ ; PZT) 纳米岛中, 也观测到类似的中心型纳米畴, 所不同

的是纳米岛中心出现反方向的柱状气泡畴, 并经过高温退火后还可恢复这类拓扑结构, 显示了良好的稳定性<sup>[55]</sup>.

除了初始就存在的拓扑畴, 还可以通过外场诱导普通畴转变为拓扑畴. 例如, 在初始为条带畴或楔形畴的 BFO 纳米岛中, 通过扫描探针的针尖施加电场, 人工诱导出中心型拓扑畴或涡旋型拓扑畴, 并且在电场下可以往复切换<sup>[56]</sup>. 这种拓扑畴状态的切换可归因于电荷注入的程度不同导致的. 除此之外, 可通过扫描探针针尖施加应力产生挠曲电效应, 还可在初始为单畴结构的钛酸铅 ( $\text{PbTiO}_3$ ; PTO) 薄膜中诱导出类斯格明子的泡状畴<sup>[57]</sup>. 以上通过扫描探针观测及调控拓扑畴的研究, 为进一步探索其新颖物性及器件用途打下基础.

### 3.2 拓扑缺陷的导电性调控及器件应用

在铁电畴中含有拓扑缺陷, 即无法通过连续形变产生或擦除的突变点, 包括二维畴壁, 以及更复杂的一维缺陷 (如涡心、中心畴中心等). 由于拓扑缺失

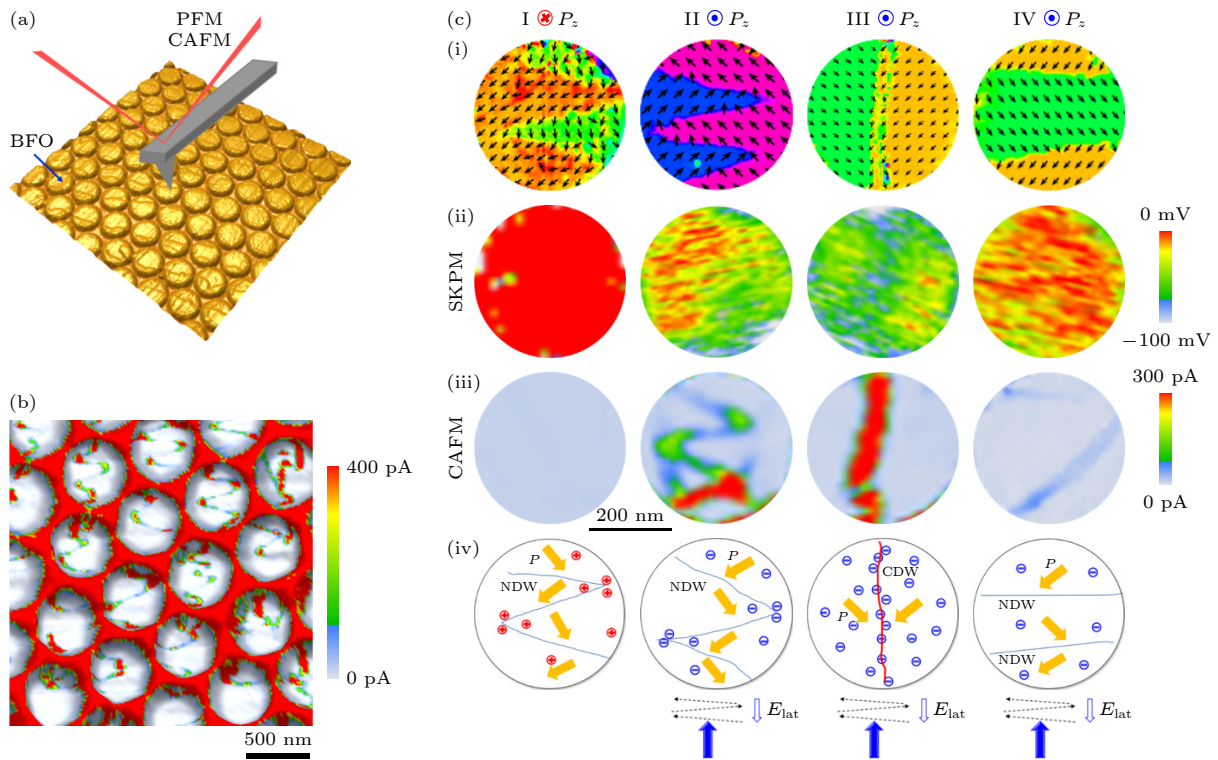


图 7 铁电纳米岛的畴壁导电性 (a) BFO 纳米岛阵列的 PFM 和 CAFM 表征示意图; (b) BFO 纳米岛阵列中导电畴壁的 CAFM 图; (c) 单个 BFO 纳米岛中不同畴壁状态相对应的表面电势、导电态和形成机制示意图, 其中 (i) 为不同畴壁状态的极化分布图, (ii) 为对应的表面电势分布图, (iii) 为不同的畴壁电导分布图, (iv) 为不同畴壁状态的形成机制的示意图<sup>[58]</sup>

Fig. 7. Ferroelectric domain wall conductivity: (a) Schematic diagram of PFM and CAFM characterization of the BFO nanodot array; (b) CAFM map of conductive domain walls in an array of BFO nanodots; (c) surface potential and schematics of possible formation mechanisms for various domain wall states in individual nanodots, where (i) is the vector map, (ii) is the SKPFM map, (iii) is the corresponding CAFM images, and (iv) is the schematic diagram to help explain the formation mechanisms for different domain wall states<sup>[58]</sup>.



极化突变点, 其大小只有几个原子层, 往往展现出与铁电畴区域截然不同的物理性能. 最具代表性的是2009年 Seidel 等<sup>[16]</sup>于 BFO 薄膜中发现的畴壁导电增强特征. 这种原子级功能拓扑缺陷可以在外加电场下产生、擦除和读取, 被认为是未来畴壁电流存储器的基本单元. 然而, 有关纳米尺度下畴壁的导电机理、可控调控性以及反复读取性还需深入研究.

针对这些问题, 本课题组探索了纳米尺度下高导电畴壁和拓扑缺陷的形成与调控机制. 沿着这一思路, Tian 等<sup>[58]</sup>首先通过聚合物微球模板辅助刻蚀法制备出高质量外延的 BFO 纳米点, 并采用 PFM 与 CAFM 来观察畴壁及其导电性(图 7(a)). 在 BFO 纳米点阵列中可清晰观察到不同类型的导电畴壁, 包括头对头电荷型畴壁、锯齿形畴壁, 以及  $71^\circ$  头对尾中性畴壁, 并表现不同量级的导电性,

见图 7(b). 进一步通过对比 PFM, CAFM 和表面电势 (Kelvin potential force microscopy, KPFM) 成像, 揭示针尖加电场产生的离子注入诱导不同导电畴壁形成的机制, 见图 7(c). 利用扫描探针施加电压, 还在 BFO 薄膜中实现了多种畴壁类型的可控调控, 特别是可擦写的具有高导电畴壁的纳米畴结构<sup>[59]</sup>. 以上研究结果克服了畴壁定位困难及擦写稳定性等问题, 也为电场诱导产生多导电态存储器件提供新途径.

更为有趣的是, 后续研究在一维拓扑缺陷中心处发现了准一维超细导电通道<sup>[56]</sup>. 通过扫描针尖施加适当电压, 可在初始为近条带畴的 BFO 纳米岛中诱导产生四象限涡旋型和中心型拓扑畴结构, 并观测到拓扑畴的缺陷中心显示出类金属性高导电通道, 如图 8 所示. 结合相场模拟, 揭示了这类

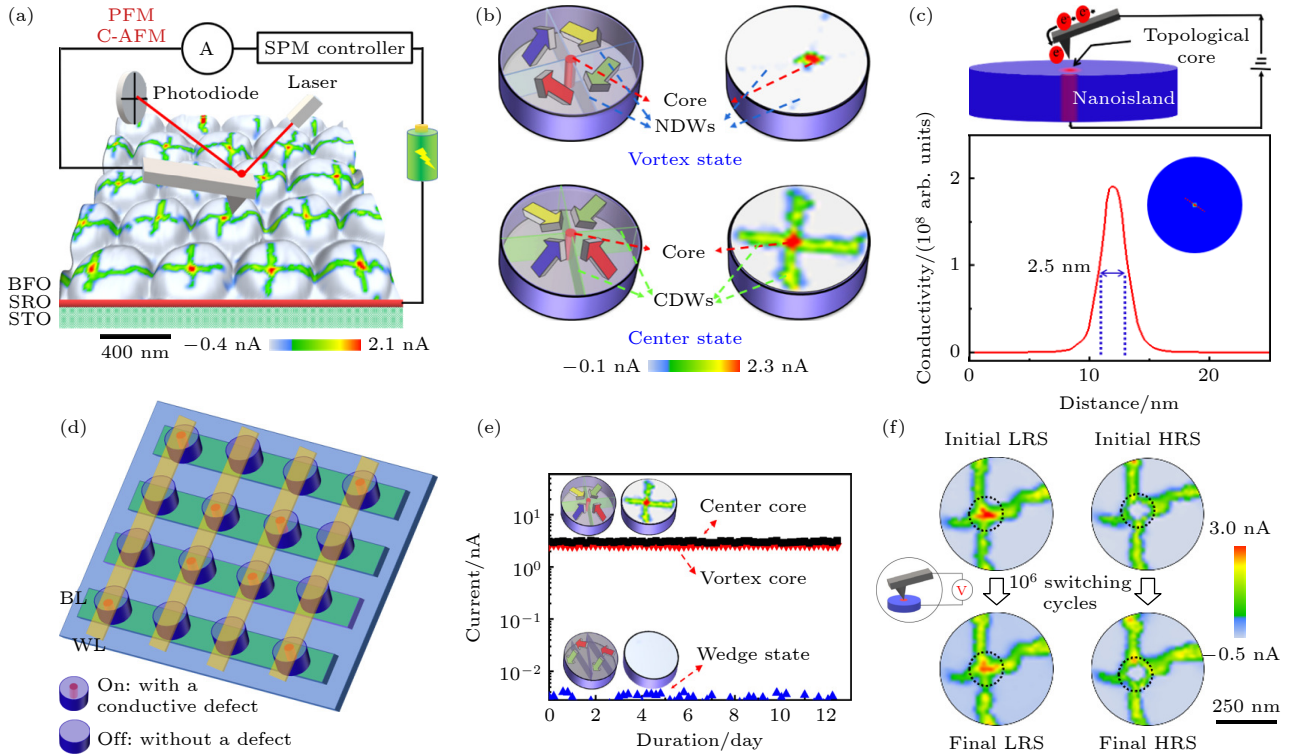


图 8 铁电拓扑缺陷中心的准一维金属性导电通道 (a) 在 BFO 纳米岛阵列上探测 CAFM 和 PFM 图像的实验装置示意图, 其中纳米岛阵列的三维形态与中心拓扑畴阵列的 CAFM 图像叠加; (b) 两种拓扑畴的极化分布示意图及对应的导电分布图像; (c) 拓扑缺陷中心的准一维导电通道示意图 (上) 和相场模拟得到的导电拓扑缺陷核心的横向尺寸 (下); (d) 利用拓扑缺陷中的可编程金属传导通道作为数据位设计的概念存储器的示意图; (e) 电阻的高低阻态之间变化的保持特性曲线; (f) 可往复切换的导电拓扑缺陷中心的疲劳特性<sup>[56]</sup>

Fig. 8. Quasi-one-dimensional metallic conduction channels in ferroelectric topological defects: (a) Schematic experimental setup for probing the C-AFM and PFM maps on an array of BFO nanoislands, wherein the 3 D morphology of an array of nanoislands was superimposed with a C-AFM map for an array of center topological states; (b) the typical domain structures of two types of topological states, along with their conduction patterns; (c) schematic diagram of the quasi-one-dimensional conductive channel at the topological core and the lateral dimension of the conductive topological core by phase field simulation; (d) a schematic conceptual crossbar memory device using the programmable metallic conduction channels in topological defects as data bits; (e) retention properties of resistance changes between the low and high-conduction states; (f) the fatigue behaviors for a switchable central core<sup>[56]</sup>.

导电通道是电荷型拓扑缺陷中心吸引的屏蔽载流子引起能带弯曲导致的,而中性涡旋中心的导电性则源于外场诱导产生的类中心汇聚的极化扭曲态产生的.这种导电通道理论尺度小于 3 nm,可以看成可擦写的准一维电子气导电通道.利用导电通道的擦写导致电导显著变化,可以构筑新概念存储器.通过导电针尖进行了读写验证,显示出 12 d 稳定保持特性,  $10^6$  次翻转后还可保持 80% 的开关比等良好器件性能,显示出开发超小尺寸器件的巨大潜力.

另一方面,为进一步开发与集成工艺相兼容的拓扑畴原型器件, Yang 等<sup>[60]</sup>在 BFO 薄膜中设计了具有独特同轴电极结构的拓扑器件单元,可通过电极施加电场直接诱导产生中心畴并调控切换,进而带动镶嵌其中的畴壁导电态的反复切换,如图 9(a)–(c) 所示.通过 CAFM 外接仪器测试显示,这种存储器件原型的开关比可达  $10^4$  以上,读取电流高达 40 nA,足以满足微电子器件高速存取的需求.由于拓扑畴和铁弹性畴对导电畴壁态的保护作用,器件表现出高稳定性,可实现亿次反复

擦写, 12 d 的稳定性.除此之外,这种器件可以大面积制备,与传统存储芯片的叉指电极布线架构相兼容,器件间串扰小等优异特性.该结果为开发有应用价值的拓扑器件迈出一小步,也成为拓扑电子学领域一个原型器件范例.

#### 4 极化调控磁畴

利用铁电极化相关的压电效应和界面效应,还可用于实现电场调控磁畴.电场驱动磁翻转是多铁性材料和磁电耦合领域的最重要课题之一,旨在用电场替代磁场/电流驱动磁翻转,从而大幅降低自旋电子学器件(如新兴的自旋扭矩转移磁随机存储器)的能耗和发热<sup>[5,6]</sup>.电控磁翻转有望用于构筑超低能耗的磁电存储或磁电耦合-自旋轨道耦合逻辑器件,从而为解决日益增长的数据处理用电问题提供一种新方案<sup>[61–66]</sup>.虽然电控磁性的器件应用远景十分诱人,但器件化的前提是实现可控电驱动磁畴态往复翻转这一巨大挑战.近十年来,研究人员已探索了众多多铁异质结体系,揭示了多种新颖的

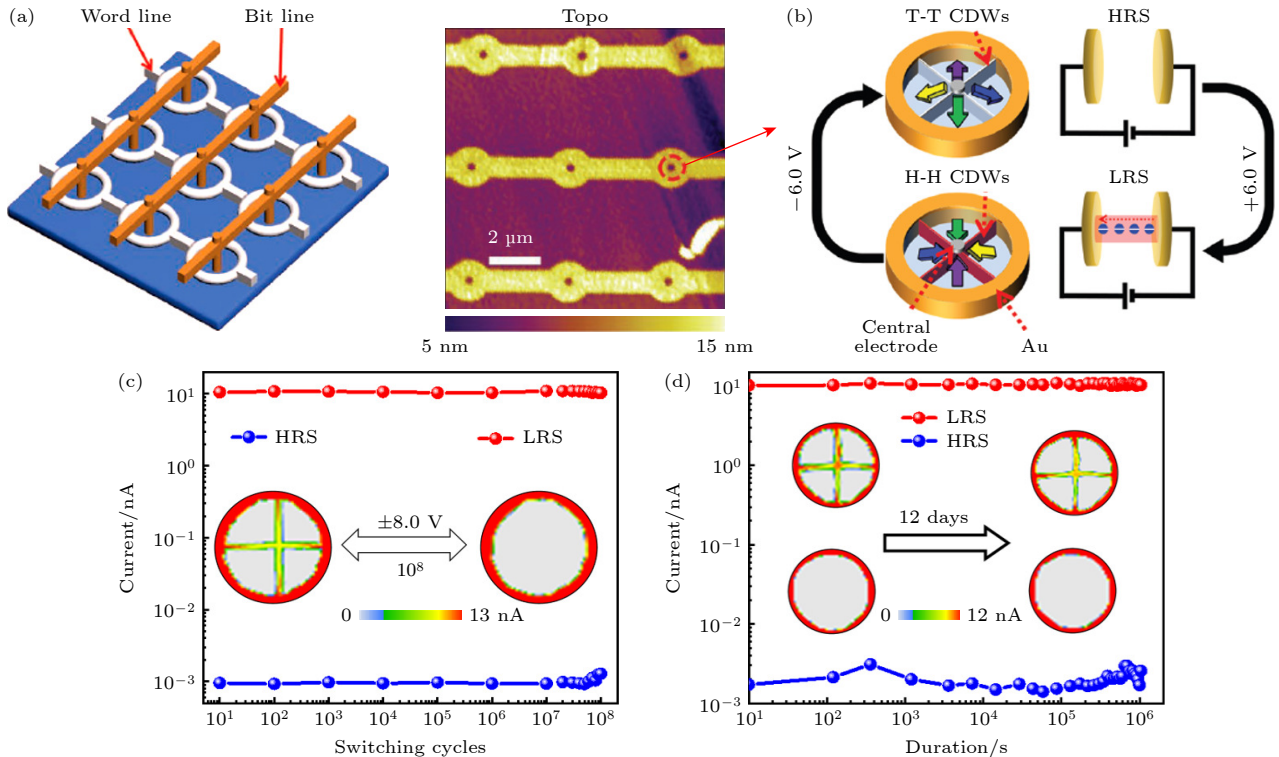


图 9 (a) 交叉集成的畴壁存储概念器件示意图和用电子束光刻技术 (electron beam lithography, EBL) 制备的器件阵列的实例; (b) 基于导电畴壁态产生和消除的原理图; (c) 高低阻态在  $10^8$  次切换的耐受性能; (d) 高低阻态在室温下的保持特性<sup>[60]</sup>

Fig. 9. (a) Conceptual crossbar-integrated domain-wall memory device and an example of a device array fabricated by the Electron beam lithography (EBL) technique; (b) schematic working principle based on creation and erasure of conductive domain-wall states; (c) endurance properties for both LRS and HRS over  $10^8$  switching cycles; (d) the retention properties for LRS and HRS at a room temperature<sup>[60]</sup>.



电控磁机理, 丰富了电场调控磁性的手段. 随着电控磁研究向器件应用推进, 微型化问题变得越发重要, 尤为迫切的是探索小尺度器件单元内电场驱动磁反转行为. 下文介绍利用扫描探针研究纳米多铁性材料的电控磁性工作.

#### 4.1 电控纳米磁畴观测

为了观测纳米尺度多铁性材料的电控磁性, 课题组采用磁力显微镜 (magnetic force microscopy, MFM) 观测磁畴的变化, 并通过针尖施加电场调控磁畴. Tian 等<sup>[67]</sup> 利用针尖电场扫描  $\text{SrRuO}_3/\text{CoFe}_2\text{O}_4/\text{BiFeO}_3$  (SRO/CFO/BFO) 外延多铁异质结纳米岛 (直径约为 60 nm) 阵列表面, 诱导磁力显微镜图像的衬度改变 (见图 10(a)), 显示出电控磁翻转可能. 通过微观磁电耦合测量, 其磁电耦合系数比传统多铁异质结薄膜高 3 个量级, 这可归因于该结构可有效释放界面挟持效应, 从而显著增

强磁电耦合并导致电控磁翻转成为可能. 利用这种方法, 在 1-3 型柱状 CFO/BFO 复合多铁性薄膜中观测到 CFO 纳米磁畴的电控磁翻转<sup>[68]</sup>, 并诱导 BFO 薄膜上方的圆型 Co 纳米岛产生从初始单畴态到涡旋畴的转变<sup>[69]</sup>. 然而, 以上电控磁翻转并不可控或需要外磁场参与才可能实现往复翻转.

为获得更可控的磁翻转, Yao 等<sup>[70]</sup> 设计了超四方相 BFO/三角状纳米 Co 点组成的多铁异质结, 通过应变与界面交换耦合协同作用, 实现了 Co 纳米点的磁畴态  $120^\circ$  往复翻转, 如图 10(b) 所示. 为解析 MFM 所代表的较复杂的磁畴态, 通过将 MFM 像与微磁学模拟的磁畴态的 MFM 仿真衬度, 揭示出“Y 型”磁畴态. 通过扫描探针针尖施加脉冲电压, 可诱导纳米 Co 点的磁畴出现往复可控  $120^\circ$  翻转, 并可在 10 ns 短电脉冲下驱动磁畴翻转. 该结果提供了一种构建可高速读写的高密度磁存储器件的新途径.

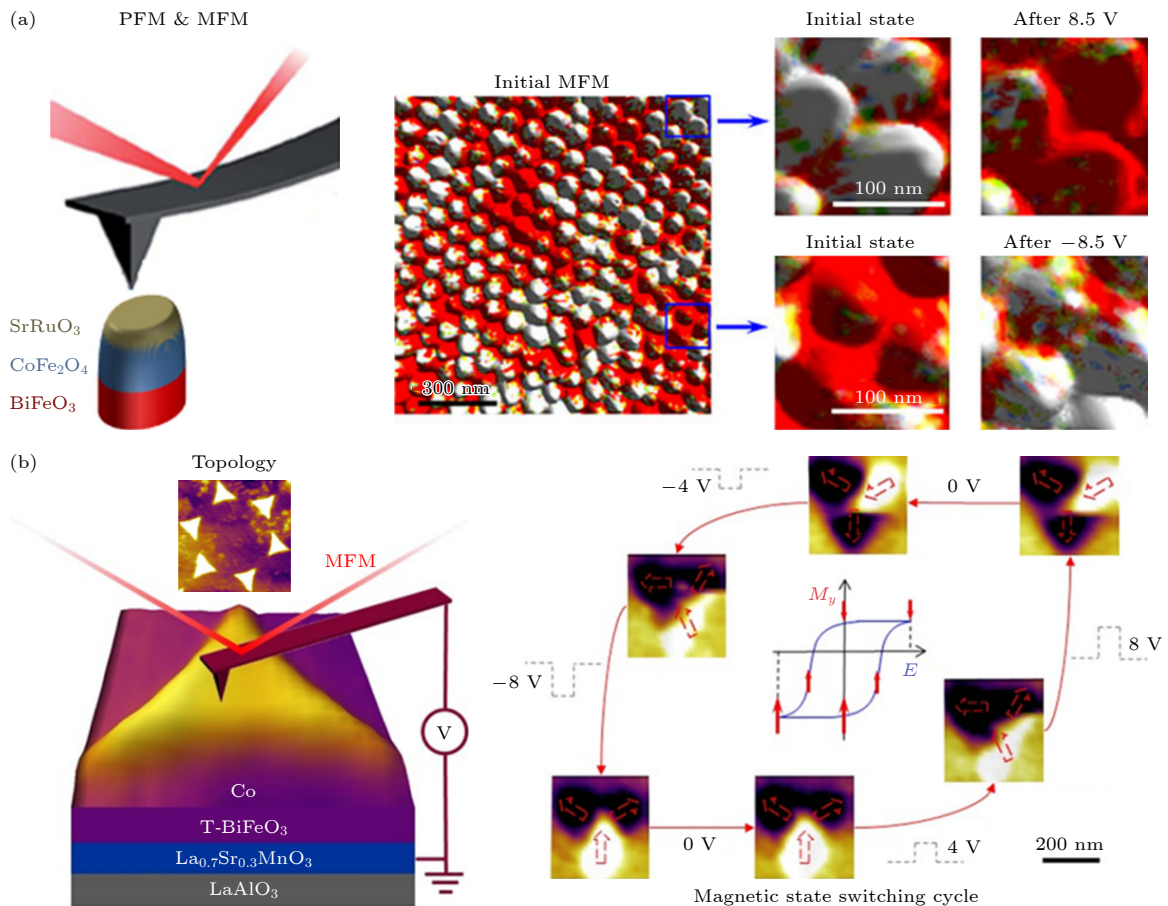


图 10 (a) 电场控制 SRO/CFO/BFO 多铁异质结纳米岛中的磁畴翻转<sup>[67]</sup>; (b) 电场驱动在 T-BFO/LAO 薄膜上的三角形 Co 纳米磁体的可逆  $120^\circ$  磁畴态旋转<sup>[70]</sup>

Fig. 10. (a) Electric field control of magnetic domain switching in SRO/CFO/BFO nanodots<sup>[67]</sup>; (b) electric field driven reversible  $120^\circ$  magnetic state rotation in triangular-shape Co nanomagnets on tetragonal-structured  $\text{BiFeO}_3$  film on  $\text{LaAlO}_3$  substrate<sup>[70]</sup>.

## 4.2 电场驱动磁斯格明子翻转

磁性斯格明子被认为是下一代超高密度数据存储的理想媒介, 其尺寸可小至几纳米, 并具有拓扑保护等特征, 有望用于开发高密度和低能耗信息器件, 因此成为近年来的研究热点<sup>[71–77]</sup>. 这种新奇磁性拓扑态的引入, 也为电场调控磁性提供一种新的自由度.

2020 年, Wang 等<sup>[78]</sup> 在基于铁电与压电 Pb(Mg<sub>1/3</sub>, Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> (PMN-PT) 衬底和 Pt/Co/Ta 多层膜磁性纳米岛构成的多铁异质结中, 利用扫描探针的 MFM 等功能成功实现了电场诱导磁性纳米岛中产生斯格明子等多态翻转, 如图 11(a), (b) 所示. 这种调控是非易失性且无需施加外磁场, 主要通过应变调控磁各向异性和 DM (Dzyaloshinskii-Moriya) 效应起作用. 2022 年, Hou 等<sup>[79]</sup> 进一步在类似的多铁异质结构中, 通过电场成功诱导实现单纳米岛中斯格明子数目的精准调

控, 如 0, 1, 2, 4 个斯格明子数变化, 如图 11(c), (d) 所示. 这些结果表明, 通过施加电场可以实现磁电多态存储, 其翻转能量比传统电流调控方案可降低 3 个数量级以上, 为拓扑磁畴在低能耗磁电器件中的应用迈出重要一步.

## 5 总结和展望

经过多年努力, 扫描探针系统成为探索微观铁性畴及其物性调控的重要手段, 也为探索微器件及新原理提供一种简捷途径. 本课题组利用扫描探针探测和调控电畴及其输运性能, 尤其是新奇拓扑畴带来的新物性及器件用途, 以及电控磁畴, 研究结果为应对后摩尔时代器件持续微型化和降低能耗需求提供了新方案. 针对铁电畴相关领域, 尚有诸多问题亟待解决, 下面从新物性探索, 新原理器件开发, 以及扫描探针技术发展等层面提出一些思考.

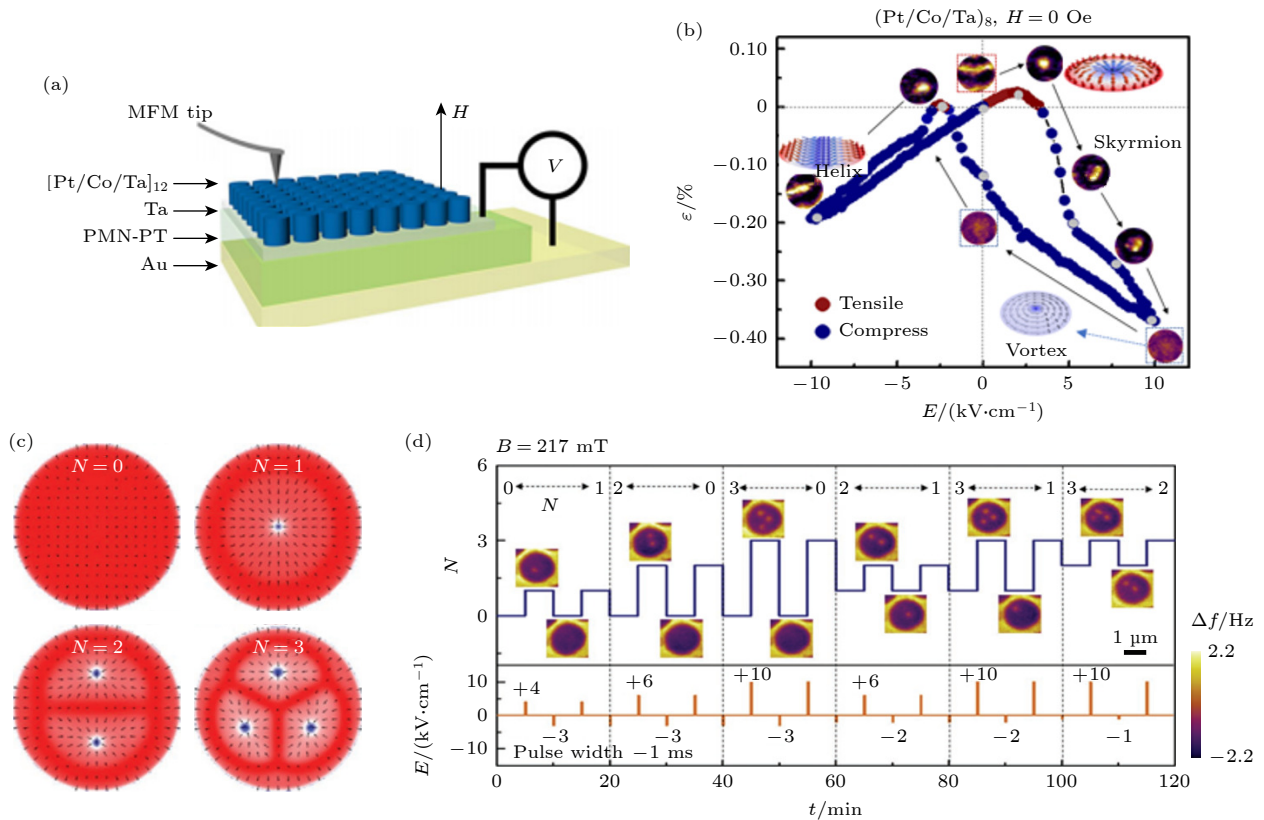


图 11 电场控制磁斯格明子 (a) [Pt/Co/Ta]<sub>12</sub>/PMN-PT 纳米点阵列结构及测试示意图<sup>[78]</sup>; (b) 在  $\sim 350$  nm [Pt/Co/Ta]<sub>8</sub> 纳米点上的平均转移应变曲线和相应的磁畴演化过程 (涡旋态、条带、斯格明子态翻转)<sup>[78]</sup>; (c) 直径 900 nm 纳米点在不同应变下的模拟自旋图<sup>[77]</sup>; (d) 电场脉冲驱动斯格明子团簇四态转变<sup>[79]</sup>

Fig. 11. Electric field manipulation of magnetic skyrmion: (a) [Pt/Co/Ta]<sub>12</sub>/PMN-PT nanodot array structure and test diagram<sup>[78]</sup>; (b) the transferred average strain curve and corresponding magnetic domain evolution processes in the  $d \sim 350$  nm [Pt/Co/Ta]<sub>8</sub> nanodots<sup>[78]</sup>; (c) the simulated spin diagram of 900 nm diameter nanodots under different strains<sup>[77]</sup>; (d) the electric field pulse drives the four-state transformation of skyrmions cluster<sup>[79]</sup>.



1) 新性能的探索. 铁电拓扑畴的诸多新物性尚未进行深入研究, 可以预见, 拓扑畴调控研究有望带来丰富的物理性能, 如低维度输运性能、磁电阻、负电容效应、光电性能等, 有望成为发现新物性和新机制的富矿, 并为构筑未来新原理器件提供新途径.

2) 新原理器件探索. 铁电畴在开发未来低能耗器件拥有巨大潜力, 有望实现飞焦到阿焦级的超低操作能耗. 利用电控磁与自旋轨道耦合机制相结合构筑 MESO 逻辑器件, 已显示出低能耗器件功能. 而铁电拓扑缺陷的超细导电通道的发现并成功擦写, 也提供一种可能. 为此实现低能耗器件, 在材料层面需大幅降低铁电翻转电压并且实现稳定可控的畴翻转或电控磁翻转. 在器件层面, 由于微加工和布线的难度及成本较大, 而通过原子力扫描探针测试器件性能并研究微观机制, 可以简化这一过程, 从而成为器件原理研究的利器. 此外, 扫描探针还具备纳米尺度辅助微加工功能, 为原型新原理器件探索提供便利. 同时也需认识到, 利用针尖进行器件功能验证跟实际器件探测还有差异, 需细致比较两者测试结果, 建立起探针验证与实际器件测试的桥梁.

3) 进一步发展探测系统的新功能. 扫描探针系统是集多功能探测、调控与微加工功能于一体的仪器. 然而, 也存在一些问题, 如分辨率不如球差电镜, 成像速度慢等, 难以同时进行成分和结构成像, 以及存在假信号等问题. 一方面需要与其他测试技术(如透射电镜等)的结果相比较, 用以克服仪器短板, 并排除假信号. 为更好探索铁电畴和多铁性材料的新物性和新功能, 还需在扫描探针系统集成更多新功能, 例如利用多普勒效应定量化测试压电系数, 扫描微波功能测试载流子状态, 近场红外技术高分辨探测光学性能, 金刚石色心技术探测弱磁场, 超快扫描实现视频级成像等. 而原子力与深度学习的结合, 也为探索新功能和新机制带来机会. 这些技术的发展, 有望大幅拓展扫描探针技术的深度和广度, 成为功能更强大的“针尖实验室”.

## 参考文献

- [1] Scott J F 2007 *Science* **315** 954
- [2] Nan C W, Bichurin M I, Dong S X, Viehland D, Srinivasan G 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 031101
- [3] Dong S, Liu J M, Cheong S W, Ren Z F 2015 *Adv. Phys.* **64** 519
- [4] Polking M J, Han M G, Yourdkhani A, Petkov V, Kisielowski C F, Volkov V V, Zhu Y, Caruntu G, Alivisatos A P, Ramesh R 2012 *Nat. Mater.* **11** 700
- [5] Hu J M, Chen L Q, Nan C W 2016 *Adv. Mater.* **28** 15
- [6] Hu J M, Li Zheng, Chen L Q, Nan C W 2011 *Nat. Commun.* **2** 553
- [7] Seidel J, Vasudevan R K, Nagarajan V 2016 *Adv. Electron. Mater.* **2** 1500292
- [8] Seidel J 2019 *Nat. Mater.* **18** 188
- [9] Das S, Hong Z, McCarter M, Shafer P, Shao Y T, Muller D A, Martin L W, Ramesh R 2020 *APL Mater.* **8** 120902
- [10] Tang Y L, Zhu Y L, Ma X L 2021 *J. Appl. Phys.* **129** 200904
- [11] Tang Y L, Zhu Y L, Ma X L, Borisevich A Y, Morozovska A N, Eliseev E A, Wang W Y, Wang Y J, Xu Y B, Zhang Z D, Pennycook S J 2015 *Science* **348** 547
- [12] Yadav A K, Nelson C T, Hsu S L, Hong Z, Clarkson J D, Schlepütz C M, Damodaran A R, Shafer P, Arenholz E, Dedon L R, Chen D, Vishwanath A, Minor A M, Chen L Q, Scott J F, Martin L W, Ramesh R 2016 *Nature* **530** 198
- [13] Li Z W, Wang Y J, Tian G, Li P L, Zhao L N, Zhang F Y, Yao J X, Fan H, Song X, Chen D Y, Fan Z, Qin M H, Zeng M, Zhang Z, Lu X B, Hu S J, Lei C H, Zhu Q F, Li J Y, Gao X S, Liu J M 2017 *Sci Adv* **3** e1700919
- [14] Das S, Tang Y L, Hong Z, et al. 2019 *Nature* **568** 368
- [15] Rodriguez B J, Gao X S, Liu L F, Lee W, Naumov I I, Bratkovsky A M, Hesse D, Alexe M 2009 *Nano Lett.* **9** 1127
- [16] Seidel J, Martin L W, He Q, Zhan Q, Chu Y H, Rother A, Hawkridge M E, Maksymovych, Yu P, Gajek M, Balke N, Kalinin S V, Gemming S, Wang F, Catalan G, Scott J F, Spaldin N A, Orenstein J, Ramesh R 2009 *Nat. Mater.* **8** 229
- [17] Gao F, Chen X Y, Yin K B, Dong S, Ren Z F, Yuan F, Yu T, Zou Z G, Liu J-M 2007 *Adv. Mater.* **19** 2889
- [18] Seidel J, Fu D, Yang S Y, Alarcon-Llado E, Wu J, Ramesh R, Ager III J W 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 126805
- [19] He Q, Yeh C H, Yang J C, Singh-Bhalla G, Liang C W, Chiu P W, Catalan G, Martin L W, Chu Y H, Scott J F, Ramesh R 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 067203
- [20] Park T J, Papaefthymiou G C, Viescas A J, Moodenbaugh A R, Wong S S 2007 *Nano Lett.* **7** 766
- [21] Vasudevan R K, Bogle K A, Kumar A, Jesse S, Magaraggia R, Stamps R, Ogale S B, Potdar H S, Nagarajan V 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 252905
- [22] Tsymbal E Y, Kohlstedt 2006 *Science* **313** 181
- [23] Lin Y B, Yan Z B, Lu X B, Lu Z X, Zeng M, Chen Y, Gao X S, Wan J G, Dai J Y, Liu J-M 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 143503
- [24] Yan F, Xing G Z, Li L 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 132904
- [25] Wang C, Jin K J, Xu Z T, Wang L, Ge C, Lu H-B, Guo H-Z, He M, Yang G Z 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 192901
- [26] Banerjee W, Kashir A, Kamba S 2022 *Samll* **18** 2107575
- [27] Choi T, Lee S, Choi Y J, Kiryukhin V, Cheong S-W 2009 *Science* **324** 63
- [28] Guo R, You L, Zhou Y, Lim Z S, Zou X, Chen L, Ramesh R, Wang J L 2013 *Nat. Commun.* **4** 1990
- [29] Hu W J, Wang Z H, Yu W L, Wu T 2016 *Nat. Commun.* **7** 10808
- [30] Yi H T, Choi T, Choi S G, Oh Y S, Cheong S W 2011 *Adv. Mater.* **23** 3403
- [31] Chang K, Liu J W, Lin H C, Wang N, Zhao K, Zhang A M, Jin F, Zhong Y, Hu X P, Duan W H, Zhang Q M, Fu L, Xue Q K, Chen X, Ji S H 2016 *Science* **353** 274

- [32] Gou J, Bai H, Zhang X L, Huang Y L, Duan S S, Ariando A, Yang S A, Chen L, Lu Y H, Wee A T S 2023 *Nature* **617** 67
- [33] Gao X S, Liu J-M, Au K, Dai J Y 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 142905
- [34] Zhang F Y, Miao Q, Tian G, Lu Z X, Zhao L N, Fan H, Song X, Li Z W, Zeng M, Gao X S, Liu J M 2016 *Nanotechnology* **27** 015703
- [35] Chen D Y, Chen Z H, He Q, Clarkson J D, Serrao C R, Yadav A K, Nowakowski M E, Fan Z, You L, Gao X S, Zeng D H, Chen L, Borisevich A Y, Salahuddin S, Liu J-M, Bokor J 2017 *Nano Lett.* **17** 486
- [36] Lu Z X, Fan Z, Li P L, Fan H, Tian G, Song X, Li Z W, Zhao L N, Huang K R, Zhang F Y, Zhang Z, Zeng M, Gao X S, Feng J J, Wan J G, Liu J M 2016 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **8** 23963
- [37] Miao Q, Zeng M, Zhang Z, Lu X B, Dai J Y, Gao X S, Liu J M 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 182903
- [38] Lu Z X, Li P L, Wan J G, Huang Z F, Tian G, Pan D F, Fan Z, Gao X S, Liu J M 2021 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **9** 27284
- [39] Fan H, Fan Z, Li P L, Zhang F Y, Tian G, Yao J X, Li Z W, Song X, Chen D Y, Han B, Zeng M, Wu S J, Zhang Z, Qin M H, Lu X B, Gao J W, Lu Z X, Zhang Z, Dai J Y, Gao X S, Liu J-M 2017 *J. Mater. Chem. C* **5** 3323
- [40] Gao S, Liu G, Yang H, Hu C, Chen Q, Gong G, Xue W, Yi X, Shang J, Li R W 2019 *ACS Nano* **13** 2634
- [41] Tan H, Ni Z Y, Peng W B, Du S C, Liu X K, Zhao S Y, Li W, Ye Z, Xu M S, Xu Y, Pi X D, Yang D R 2018 *Nano Energy* **52** 422
- [42] Zhao L, Fan Z, Chen S L, Hong L Q, Li Y Q, Tian G, Chen D Y, Hou Z P, Qin M H, Zeng M, Lu X B, Zhou G F, Gao X S, Liu J M 2020 *Adv. Electron. Mater.* **6** 201900858
- [43] Cui B Y, Fan Z, Li W J, Chen Y H, Dong S, Tan Z W, Chen S L, Tian B B, Tao R Q, Tian G, Chen D Y, Hou Z P, Qin M H, Zeng M, Lu X B, Zhou G F, Gao X S, Liu J-M 2022 *Nat. Commun.* **13** 1707
- [44] Li W J, Fan Z, Huang Q C, Rao J J, Cui B Y, Chen Z W, Lin Z S, Yan X B, Tian G, Tao R Q, Chen D Y, Qin M H, Zeng M, Lu X B, Zhou G F, Gao X S, Liu J M 2023 *Phys. Rev. Appl.* **19** 014054
- [45] Chen Z W, Li W J, Fan Z, Dong S, Chen Y H, Qin M H, Zeng M, Lu X B, Zhou G F, Gao X S, Liu J M 2023 *Nat. Commun.* **14** 3585
- [46] Zhang Y, Wang Z R, Zhu J D, Yang Y C, Rao M Y, Song W H, Zhuo Y, Zhang X M, Cui M L, Shen L L, Huang R, Yang J 2020 *Appl. Phys. Rev.* **7** 011308
- [47] Liao F Y, Zhou F C, Chai Y 2021 *J. Semicond.* **42** 013105
- [48] Ma J, Ma J, Zhang Q H, Peng R C, Wang J, Liu C, Wang M, Li N, Chen M F, Chen X X, Gao P, Gu L, Chen L Q, Yu P, Nan C W, Zhang J X 2018 *Nat. Nanotech.* **13** 947
- [49] Han M J, Wang Y J, Tang Y L, Zhu Y L, Ma J Y, Geng W R, Zou M J, Feng Y P, Zhang N B, Ma X L 2019 *J. Phys. Chem. C* **123** 2557
- [50] Wang Y J, Feng Y P, Zhu Y L, Tang Y L, Yang L X, Zou M J, Geng W R, Han M J, Guo X W, Wu B, Ma X L 2020 *Nat. Mater.* **19** 881
- [51] Naumov I I, Bellaiche L, Fu H X 2004 *Nature* **432** 737
- [52] Kalinin S V, Gruverman A 2006 *J. Mater. Sci.* **41** 107
- [53] Tian G, Chen D Y, Fan H, Li P L, Fan Z, Qin M H, Zeng M, Dai J Y, Gao X S, Liu J M 2017 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **9** 37219
- [54] Tian G, Yi X, Song Z Q, et al. 2023 *Appl. Phys. Rev.* **10** 021413
- [55] Chen H Y, Tian G, Yang W D, Mo Z H, Zhang L Y, Chen Y Y, Chen C, Hou Z P, Chen D Y, Fan Z, Gao X S, Liu J-M 2020 *J. Appl. Phys.* **128** 224103
- [56] Yang W D, Tian G, Zhang Y, Xue F, Zheng D F, Zhang L Y, Wang Y D, Chen C, Fan Z, Hou Z P, Chen D Y, Gao J W, Zeng M, Qin M H, Chen L Q, Gao X S, Liu J M 2021 *Nat. Commun.* **12** 1306
- [57] Zhang X C, Chen H Y, Tian Guo, Yang W D, Fan Z, Hou Z P, Chen D Y, Zeng M, Qin M H, Gao J W, Gao X S, Liu J-M 2023 *Journal of Materiomics* **9** 626
- [58] Tian G, Yang W D, Song X, Zheng D F, Zhang L Y, Chen C, Li P L, Fan H, Yao J X, Chen D Y, Fan Z, Hou Z P, Zhang Z, Wu S J, Zeng M, Gao X S, Liu J M 2019 *Adv. Funct. Mater.* **19** 1807276
- [59] Zheng D F, Tian G, Wang Y D, Yang W D, Zhang L Y, Chen Z F, Fan Z, Chen D Y, Hou Z P, Gao X S, Li Q L, Liu J M 2022 *J. Materiomics* **8** 2022
- [60] Yang W D, Tian G, Fan H, Zhao Y, Chen H Y, Zhang L Y, Wang Y D, Fan Z, Hou Z P, Chen D Y, Gao J W, Zeng M, Lu X B, Qin M H, Gao X S, Liu J M 2022 *Adv. Mater.* **34** 2107711
- [61] Bibes M, Barthelemy 2008 *Nat. Mater.* **7** 425
- [62] Amiri P K, Alzate J G, Cai X Q, Ebrahimi F, Hu Q, Wong K, Grezes C, Lee H, Yu G Q, Li X, Akyol M, Shao Q, Katine J A, Langer J, Ocker B, Wang K L 2015 *IEEE Trans. Magn* **51**
- [63] Zhou W, Xiong Y Q, Zhang Z M, Wang D H, Tan W S, Cao Q Q, Qian Z H, Du Y W 2016 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **8** 5424
- [64] Zheng R K, Li X G 2013 *Prog. Phys.* **33** 359 (in Chinese) [郑仁奎, 李晓光 2013 物理学进展 33 359]
- [65] Song X, Gao X S, Liu J-M 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 157512 (in Chinese) [宋晓, 高兴森, 刘俊明 2018 物理学报 67 157512]
- [66] Kosub T, Kopte M, Hühne R, Appel P, Shields B, Maletinsky P, Hühne R, Liedke M O, Fassbender J, Schmidt O G, Makarov D 2017 *Nat. Commun.* **8** 13985
- [67] Tian G, Zhang F Y, Yao J X, Fan H, Li P L, Li Z W, Song X, Zhang X Y, Qin M H, Zeng M, Zhang Z, Yao J X, Gao X S, Liu J-M 2016 *ACS Nano* **10** 1025
- [68] Tian G, Ojha S, Ning S, Gao X S, Ross C A 2019 *Adv. Electron. Mater.* **5** 1900012
- [69] Zhong X, Tian G, Song X, Wang Y D, Yang W D, Li P L, Luo Q Y, Hou Z P, Fan Z, Chen D Y, Qin M H, Zeng M, Gao X S, Liu J M 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 012901
- [70] Yao J X, Song X, Gao X S, Tian G, Li P L, Fan H, Huang Z F, Yang W D, Chen D Y, Fan Z, Zeng M, Liu J-M 2018 *ACS Nano* **12** 6767
- [71] Wiesendanger R 2016 *Nat. Rev. Mater.* **1** 16044
- [72] Zhou Y 2019 *Natl. Sci. Rev.* **6** 210 212
- [73] Fert A, Cros V, Sampaio J 2013 *Nat. Nanotech.* **8** 152
- [74] Rosch A 2013 *Nat. Nanotech.* **8** 160
- [75] Liang D, DeGrave J P, Stolt M J, Tokura Y, Jin S 2015 *Nat. Commun.* **6** 8217
- [76] Hou Z P, Zhang Q, Zhang X C, Xu G Z, et al. 2020 *Adv. Mater.* **32** 1904815
- [77] Iwasaki J, Mochizuki M, Nagaosa N 2013 *Nat. Nanotech.* **8** 742
- [78] Wang Y D, Wang L, Xia J, et al. 2020 *Nat. Commun.* **11** 3577
- [79] Hou Z P, Wang Y D, Lan X M, et al. 2022 *Adv. Mater.* **34** 202107908



SPECIAL TOPIC — The 90th Anniversary of South China Normal University and Physics Discipline

# Laboratory experiments based on tip probe — Scanning probe detection and regulation of ferroelectric domains and their microscopic physical properties<sup>\*</sup>

Tian Guo<sup>1)</sup> Fan Zhen<sup>1)</sup> Chen De-Yang<sup>1)</sup> Hou Zhi-Peng<sup>1)</sup>  
Liu Jun-Ming<sup>1)2)</sup> Gao Xing-Sen<sup>1)†</sup>

1) (*Guangdong Provincial Key Laboratory of Quantum Engineering and Quantum Materials and Institute for Advanced Materials, South China Academy of Optoelectronics, South China Normal University, Guangzhou 510006, China*)

2) (*National Laboratory of Solid State Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

( Received 7 June 2023; revised manuscript received 25 July 2023 )

## Abstract

Ferroelectric and multiferroic materials have gained significant attention due to their potential applications in investigating emergent cross-coupling phenomena among spin, charge, orbit, and lattice in correlated electron systems, as well as promising candidates for prospective applications in advanced industries, *e.g.* data memory/processing, sensors, actuators, and energy-relevant devices. The structure and dynamic characteristics of ferroelectric domains can significantly affect the physical properties and device functions of materials, such as electrical conductivity, photovoltaics, and magnetoelectric coupling, particularly, novel topological domains can bring many new physical properties. These make it possible to design materials and devices through domain engineering methods. Therefore, exploring the microdomain structures and related physical property is expected to bring new material and device solutions for post-Moore's era information technology.

Accurate understanding of domain structures and their corresponding functionalities pose challenges to characterization techniques. In particular, it remains challenging to investigate the dynamics and cross-coupling behaviors on a nanoscale *in situ*. Nowadays, it is worthwhile to pay more attention to the multifunctional scanning probe microscopy technique, as it serves as a versatile and powerful nanoscale probe capable of exploring multifunctionalities. Multi-field stimulation such as electric field, magnetic field, light illumination, strain field, and thermal field can be combined with the advanced scanning probe microscopy technique, making it an ideal platform for in-situ manipulation of domain structure and its related functional response on a nano-scale.

In this study, we give a brief overview on the recent advances in our research group in detection and manipulation of ferroelectric domains and microscopic physical properties through multifunctional scanning probe microscopy technique. Special attention is paid to those topological domain structures such as vortex, center domain state and bubble domain in size-confined systems (ultrathin films/multilayers and nanodots/nanoislands) and their associated novel physical phenomena. In addition, the controllability of electric field driven magnetic switching in multiferroic heterostructures is also studied through size effect, interfacial coupling and domain engineering. Finally, we present some suggestions for future directions. Most of these studies are conducted by using the tip probe, so it is named the "Laboratory experiments based on tip probe".

**Keywords:** scanning probe microscopy, ferroelectric domains, topological domains, electric-field-driven magnetic switching, information storage devices

**PACS:** 75.85.+t, 75.60.Jk, 77.80.-e, 77.90.+k

**DOI:** [10.7498/aps.72.20230954](https://doi.org/10.7498/aps.72.20230954)

<sup>\*</sup> Project supported by the National Key Research and Development Programs of China (Grant No. 2022YFB3807603), the Natural Science Foundation of China (Grant Nos. U22A20117, 52002134, 92163210), the Science and Technology Planning Project of Guangdong Province, China (Grant No. 202201000008), and the Hong Kong Scholar Program, China (Grant No. XJ2022004).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [xingsengao@scnu.edu.cn](mailto:xingsengao@scnu.edu.cn)

## “针尖下的实验室”——扫描探针探测与调控铁电畴及其微观物性

田国 樊贞 陈德杨 侯志鹏 刘俊明 高兴森

### Laboratory experiments based on tip probe – Scanning probe detection and regulation of ferroelectric domains and their microscopic physical properties

Tian Guo Fan Zhen Chen De-Yang Hou Zhi-Peng Liu Jun-Ming Gao Xing-Sen

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 207501 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230954

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230954>

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

#### 铁电纳米结构中奇异极化拓扑畴的研究新进展

Recent progress in exotic polar topological states in ferroelectric nanostructures

物理学报. 2020, 69(21): 217501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201063>

#### 铁电材料中的极性拓扑结构

Polar topological structures in ferroelectric materials

物理学报. 2020, 69(12): 127702 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200311>

#### 铁电材料中的电畴: 形成、结构、动力学及相关性能

Domains in ferroelectrics: formation, structure, mobility and related properties

物理学报. 2020, 69(12): 127704 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200312>

#### 相场模拟应变调控 $\text{PbZr}_{(1-x)}\text{Ti}_x\text{O}_3$ 薄膜微观畴结构和宏观铁电性能

Phase field simulation of misfit strain manipulating domain structure and ferroelectric properties in  $\text{PbZr}_{(1-x)}\text{Ti}_x\text{O}_3$  thin films

物理学报. 2020, 69(12): 127801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200310>

#### 交变力磁力显微镜: 在三维空间同时观测静态和动态磁畴

Alternating magnetic force microscopy: simultaneous observation of static and dynamic magnetic field in three-dimensional space

物理学报. 2019, 68(16): 168502 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190510>

#### 二维拓扑绝缘体的扫描隧道显微镜研究

Scanning tunneling microscopy study on two-dimensional topological insulators

物理学报. 2019, 68(22): 226801 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191631>