

专题：电介质材料和物理

## 铁电材料中的极性拓扑结构\*

谭丛兵<sup>1)2)</sup> 钟向丽<sup>2)</sup> 王金斌<sup>2)†</sup>

1) (湖南科技大学物理与电子科学学院, 湘潭 411201)

2) (湘潭大学材料科学与工程学院, 湘潭 411105)

(2020年2月28日收到; 2020年3月27日收到修改稿)

调控磁性材料中的自旋拓扑结构(流量闭合型、涡旋、半子(meron)、斯格明子(skyrmion)等自旋组态)可以改进材料的磁性和电磁性能,因而引起了学术界的广泛关注.最近研究表明,在尺寸效应、界面耦合及其相互作用、外延应变等作用下,铁电材料中也会出现自发的极性拓扑畴结构,同时表现出新的铁电相结构和丰富的物理性能.本文总结了铁电纳米结构、铁电薄膜和铁电超晶格中的极性拓扑畴结构类型及其形成机理,分析了这些极性拓扑结构与铁电、压电、介电、光电性能之间的关联,并分别讨论了铁电材料中极性拓扑结构的整体拓扑相变调控和单个极性拓扑结构的外场调控,最后展望了极性拓扑结构未来的可能研究方向.

**关键词:** 铁电材料, 铁电畴, 极性拓扑结构, 调控**PACS:** 77.80.Dj, 75.70.Kw, 77.84.-s, 75.60.Ch**DOI:** 10.7498/aps.69.20200311

## 1 引言

铁电材料在室温下存在非挥发性的铁电自发极化,外加电场可以改变极化方向.局部有序的自发极化形成的铁电畴和畴壁结构很大程度上决定了铁电材料的铁电性、压电性、介电性、热释电性、电光效应等特性.铁电畴结构在纳米尺度上可调控,使铁电材料在数据存储/处理、传感、谐振和能源等先进纳米功能器件中具有重大应用潜力<sup>[1-9]</sup>.例如,基于电场作用下铁电畴翻转的低维铁电结构可以用来制备下一代高密度铁电非挥发性随机存储器<sup>[5,10-12]</sup>.但随着存储器的密度增加到 Gbit/in<sup>2</sup>量级,存储数据的独立存储单元尺寸已经减小到约 10 nm,尺寸缩减将产生明显的尺寸效应和表面效应,进而引起铁电材料中的畴结构发生变化,这将会影响存储数据的存储、读取,甚至会使存储的数据失效<sup>[13]</sup>.因此,依靠传统的存储单元尺寸减小

来提高存储密度的方法已经大受限制,更小的新信息存储单元的研究将需要另辟蹊径.

2013年,诺贝尔物理学奖获得者 Fert 教授等<sup>[14]</sup>提出以具有拓扑保护特性的磁性拓扑缺陷(如磁斯格明子)作为信息存储单元,用其存在与否来记录二进制信息的“1”和“0”,可实现非接触式读写,引起了人们在磁性自旋自发形成的磁性拓扑结构在纳米自旋电子学的潜在应用方面的极大兴趣.但是研究人员在实验上观测到的磁性拓扑结构尺寸都在 20 nm 以上<sup>[15-21]</sup>,这引出了一个问题:在铁电材料中,与磁性材料中的磁性自旋结构类似的电偶极子(自发铁电极化)是否可以实现类似排列,形成更小尺寸的极性拓扑结构.Naumov 等<sup>[22]</sup>曾采用第一性原理计算,预言铁电纳米点中可能存在尺寸小至 3.2 nm 的双稳态极性涡旋畴结构,并从理论上推测基于这种极性拓扑结构的信息存储单元理论上可以实现面积密度超过 60 Tbit/in<sup>2</sup>的超高密度存储器.最近几年来,陆续有研究人员通过

\* 国家自然科学基金(批准号: 11875229, 51872251)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jbwang@xtu.edu.cn

压电力显微镜 (PFM) 在钙钛矿铁电薄膜中观测到了多种类型的极性拓扑结构<sup>[23–28]</sup>, 这些电场可控的拓扑状态具有独特的电传导特性, 并可实现非破坏性写入与读出<sup>[29–33]</sup>. 随着扫描透射电子显微镜 (STEM) 的发展, 研究人员在钙钛矿铁电薄膜中获得了纳米级极性拓扑畴的原子级结构信息<sup>[34–41]</sup>. 发现这种极化拓扑能够在室温稳定存在, 且无需外场诱导产生, 具有类似磁性自旋拓扑结构的准粒子行为, 相对更容易实现后续动力学行为研究和调控, 这些原子尺度的极性拓扑畴结构无疑将为研制拓扑纳米电子器件开辟一条新途径<sup>[1,5,8]</sup>.

本文首先简要介绍磁性材料中的拓扑结构, 然后重点介绍铁电材料中的极性拓扑结构和相关的特性, 最后探讨有待研究的问题和新的方向.

## 2 磁性材料中的自旋拓扑结构

早在 20 世纪 40 年代, Kittel<sup>[42]</sup> 就提出, 因为晶体各向异性性能和相邻自旋磁矩的耦合作用, 磁性材料中可能存在不同的磁畴结构. 当晶体各向异性能量占主导地位时, 平凡的磁畴壁 (图 1(a)) 会形成全通量闭合结构 (图 1(b)), 而当相邻磁矩之间的耦合作用超过各向异性性能时, 可能出现涡旋或反涡旋状结构, 如图 1(c) 和图 1(d). Mermin<sup>[43]</sup> 将这类特殊畴结构定义为拓扑缺陷, 即序参数停止连续变化且具有低维奇异性的区域. 一般来讲, 铁磁畴壁可归类为二维平凡的拓扑缺陷<sup>[44]</sup>, 而更为复杂的通量闭合型、涡旋、反涡旋<sup>[45–52]</sup>、中心畴、磁性

斯格明子<sup>[15,53–57]</sup> 等结构可归类为准一维非平凡的拓扑缺陷, 微结构如图 1(e)–(h) 所示. 磁性拓扑畴结构的形成主要是由纳米磁性材料的巨大退磁作用引起的, 这种退磁作用使磁矩旋度增大, 使静磁能量降至最低. 这些纳米尺度的旋转自旋结构, 特别是磁性斯格明子, 具有非平凡的真实空间拓扑结构, 形成紧凑和自组织的晶格形式, 满足经典的 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用规律<sup>[58]</sup>, 在拓扑保护下激发、湮灭和可控制运动. 这些奇异的特性为未来的高密度、高速度、低能耗信息存储器件的核心材料应用提供了巨大的潜力<sup>[59]</sup>.

类似于磁性材料中未成对电子形成的净自旋在居里温度以下形成自发磁极化, 在居里温度以下, 铁电材料中晶体对称性畸变诱导正、负离子相对偏移从而形成电偶极矩, 即自发铁电极化. 局部有序的自发极化形成铁电畴结构. 当铁电材料体系被缩小到很小尺寸低维铁电体时, 在表面退极化场、应变和静电能的竞争作用下, 自发铁电极化可能形成非平凡的、平滑变化的极性拓扑畴结构<sup>[6,60]</sup>. 近期, 研究人员已经从理论预测和实验观察上证实了在弹性能、静电能和梯度能相互作用下, 铁电材料中可以形成尺度更小的极性拓扑结构, 如通量闭合畴结构、涡旋畴、泡泡畴和手性斯格明子等, 且显著影响材料的压电、介电、非线性光学等特性<sup>[22,25,29–35,39,41,61–70]</sup>. 本文将简要讨论铁电材料中因尺寸限制而出现的极性拓扑结构及其动力学问题.

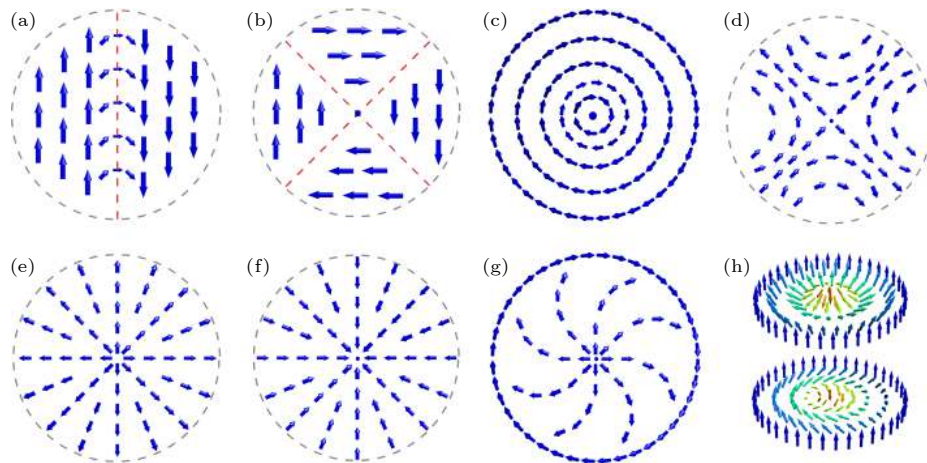


图 1 磁性材料中典型自旋拓扑缺陷结构 (a) 畴壁结构<sup>[42]</sup>; (b) 流量闭合畴结构<sup>[42]</sup>; (c) 涡旋<sup>[43]</sup>; (d) 反涡旋<sup>[43]</sup>; (e) 中心发散型结构<sup>[43]</sup>; (f) 中心收敛型结构<sup>[43]</sup>; (g) 半子<sup>[43,70]</sup>; (h) 斯格明子<sup>[43,70]</sup>

Fig. 1. Typical spin topology defects in magnetic materials: (a) Domain wall<sup>[42]</sup>; (b) flux-closure pattern<sup>[42]</sup>; (c) vortex<sup>[43]</sup>; (d) anti-vortex<sup>[43]</sup>; (e) center-divergent pattern<sup>[43]</sup>; (f) center-convergent pattern<sup>[43]</sup>; (g) meron<sup>[43,70]</sup>; (h) skyrmion<sup>[43,70]</sup>.



### 3 铁电材料中的极性拓扑结构

#### 3.1 铁电纳米颗粒中的极性拓扑畴

相对于铁电体材料而言, 纳米尺度的点/岛状铁电颗粒结构中因巨大的退极化场更易形成奇异的拓扑畴结构, 这种相互独立极化拓扑畴易于进行进一步的电场控制, 并可能与高密度集成加工兼容, 低维纳米结构中的设计与实现对未来的实际应用具有重要意义. 文献 [22, 28, 62, 71–74] 通过第一性原理计算对低维铁电纳米颗粒中可能出现的拓扑结构进行了深入的研究. 他们预测, 在强退极化场作用下, 铁电纳米颗粒中出现直径小于 4 nm

的稳定极化涡旋对畴结构, 如图 2(a)–(c) 所示. 在外加电场作用下极化涡旋可以转变成平凡的铁电畴, 这样的极性拓扑畴结构也消除了相邻纳米点之间的串扰问题, 在超高密度存储器件中有巨大应用潜力. 随后, 研究人员做了大量的理论和实验工作来证实铁电纳米颗粒中存在稳定的极化拓扑畴结构. Chen 等 [75] 通过蒙特卡罗模拟发现在圆形纳米岛屿状 BaTiO<sub>3</sub> (BTO) 颗粒中存在稳定的极化涡旋 (见图 2(d)). 大量的实验研究也发现了在铁电纳米颗粒中存在类似旋涡的通量闭合拓扑畴结构. 例如, Rodriguez 等 [28] 报道了在 AAO 模板法制备的 Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> (PZT) 纳米柱状阵列中出现少量极化通量闭合拓扑畴, 如图 2(e) 所示. 如

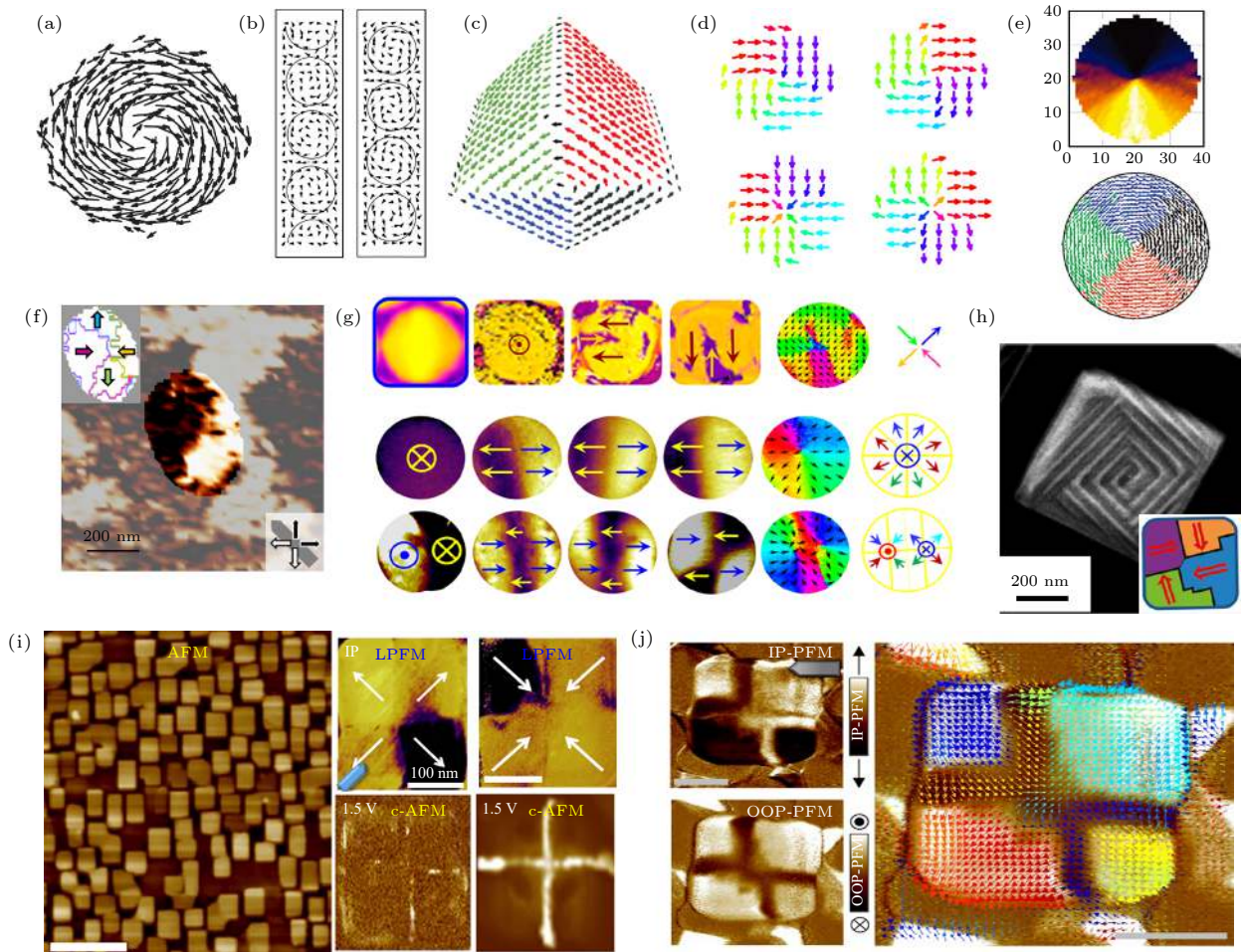


图 2 铁电纳米颗粒中典型的极性拓扑结构 (a) 超小纳米片中的极性涡旋结构 [22,71]; (b) 纳米杆中的极性涡旋结构 [22,71]; (c) 纳米点中的极性涡旋结构 [74]; (d) BTO 纳米岛中的极性涡旋 [75]; (e) PZT 纳米岛中的涡旋畴 [28]; (f) BFO 纳米岛中涡旋-反涡旋对结构 [76,77]; (g) BFO 纳米岛中的中心发散型畴结构 [76-78]; (h) BTO 单晶颗粒中的通量闭合畴 [64,79]; (i), (j) BFO 纳米岛中的可转换中心发散-收敛型畴结构及其导电特性 [29-31]

Fig. 2. Typical polar topologies in ferroelectric materials: (a) Polar vortex in nanodisks [22,71]; (b) polar vortex in nanorods [22,71]; (c) polar vortex in nanodots [74]; (d) vortex in BTO nanoislands [75]; (e) vortex domain in PZT nanodots [28]; (f) anti-vortex domain in BFO films [76,77]; (g) center-divergent domain in BFO films [76-78]; (h) flux-closure pattern in BTO crystal [64,79]; (i), (j) center-divergent (convergent) domain in BFO nanoislands [29-31].

图 2(f)–(h) 所示, 在  $\text{BiFeO}_3$  (BFO) 纳米柱状阵列中观测到中心发散、中心收敛和双中心型拓扑畴结构 [76–78]. 文献 [64, 79] 在采用聚焦离子束 (FIB) 技术所制备的自由基 BTO 纳米颗粒中观察到通量闭合畴结构. 在脉冲激光沉积 (PLD) 法制备的自组装 BFO 纳米柱状阵列中也观测到通量闭合畴结构 [29–31], 如图 2(i) 和图 2(j) 所示. 以上极化拓扑畴结构的观测都是采用极化矢量压电力显微镜分析与相场模拟结果进行比对而重构出来的特殊畴结构. 实验上观测到的极化拓扑畴结构多数为不规则的通量闭合型或中心发散 (收敛) 型拓扑结构, 而不是理论预测的极化涡旋畴 [22,71]. 原因可能是因为, 受 PFM 的分辨率限制, 这些被研究的纳米结构尺寸相对较大 ( $> 50 \text{ nm}$ ), 表面电荷或点缺陷的屏蔽作用降低了退极化强度, 不足以克服涡旋畴的形成或极化旋转所需要的能量消耗. 最近研究表明, 自组装 BFO 纳米柱状阵列中观测到的中心发散和中心收敛型拓扑畴可以在电场作用下进行可逆地转换, 不同拓扑结构显示出奇异的畴壁导电特性 [29–31], 如图 2(i) 和图 2(j) 所示. 这意味着这种极化拓扑结构可以实现电场控制下单独的地址编码, 对于拓扑畴结构在无损读出信息存储应用中具有巨大的潜力.

### 3.2 铁电薄膜中极性拓扑结构

由于表面电荷或点缺陷的屏蔽作用, 铁电纳米颗粒的退极化强度降低, 导致形成极性拓扑结构的

概率相应减小, 尺寸限制下的体状铁电材料可以有效降低电荷屏蔽效应, 可能是一种构建极性拓扑结构的有效方法 [6]. Chang 等 [26] 发现在单晶片状  $[\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3]_{0.88}[\text{PbTiO}_3]_{0.12}$  (PZNPT) 中可以自发形成多级多畴结构, 在这些多畴结构的交界处可以自发形成极化通量闭合型拓扑结构, 类似的结构在单晶片状 BTO [25] 中也被观察到. 进一步研究表明, 这种拓扑畴中心在外加电场下可以发生移动、合并和分裂等行为 [27], 如图 3 所示.

另一方面, 通过超薄膜的外延应力或应用外加场在铁电薄膜中可以创建稳态极化拓扑畴结构. 随着外延薄膜厚度的减小, 来自基底的失配应力在薄膜内逐渐起主导作用, 而自发形成特殊的畴结构. Matzen 等 [80] 报道了  $30 \text{ nm}$  厚的  $\text{Pb}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  薄膜可以自发形成微米尺度的极化通量闭合型拓扑畴结构. 2009 年, Balke 等 [66] 采用原子力显微镜 (AFM) 导电探针诱导超薄 BFO 铁电薄膜铁弹畴定向翻转, 首次在铁电薄膜中创建了稳态极化通量闭合拓扑畴 [23]. 利用 AFM 导电探针诱导 BFO 中畴的定向翻转, 拓扑畴可以在通量闭合型与中心发散或中心收敛型拓扑畴之间相互转换, 后者中心因为荷电畴壁的存在而致中心的导电性大幅提高 [65], 如图 4(a) 和图 4(b) 所示. Vasudevan 等 [68] 利用 AFM 导电探针产生的局部电场在 BFO 铁电薄膜中诱导出通量闭合型 [24]、中心发散型和中心收敛型等多种极化拓扑畴结构, 实验结果得到了相场模拟的证实, 详见图 4(c) 和图 4(d). Li 等 [67] 报道了

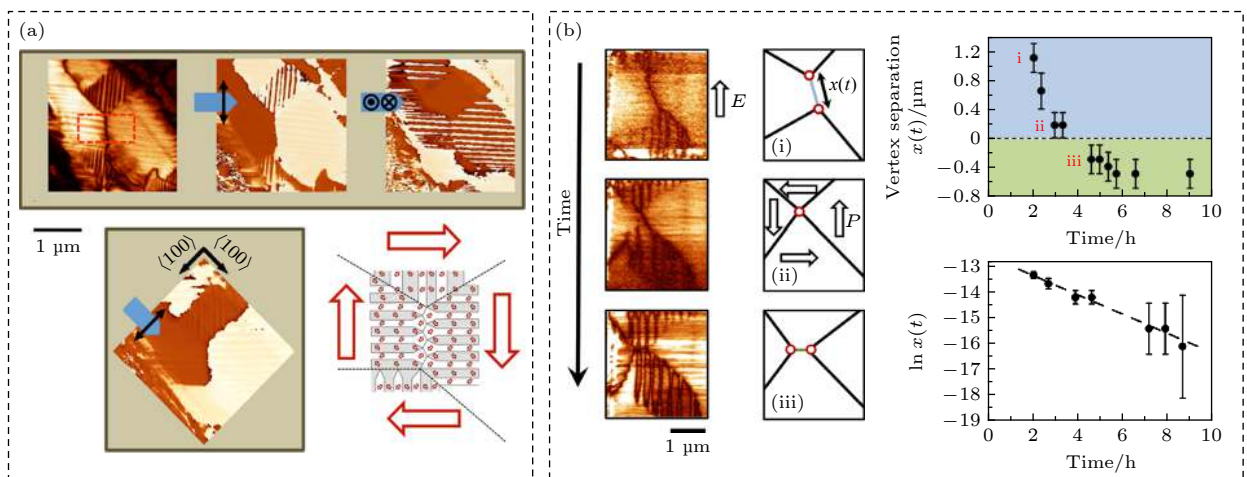


图 3 铁电材料中通量闭合型拓扑畴的可移动性 (a) 单晶片状 PZNPT 中自组装多级多畴通量闭合型拓扑畴 [26]; (b) 通量闭合型拓扑畴中心在外加电场下移动、合并和分裂 [27]

Fig. 3. Mobility of flux-closed topological domains in ferroelectric materials: (a) Bundles-like domain structures at the edges of the PZNPT single crystal lamella [26]; (b) approach, coalesce and separate of the vertices after delivery of a prepoling field pulse [27].



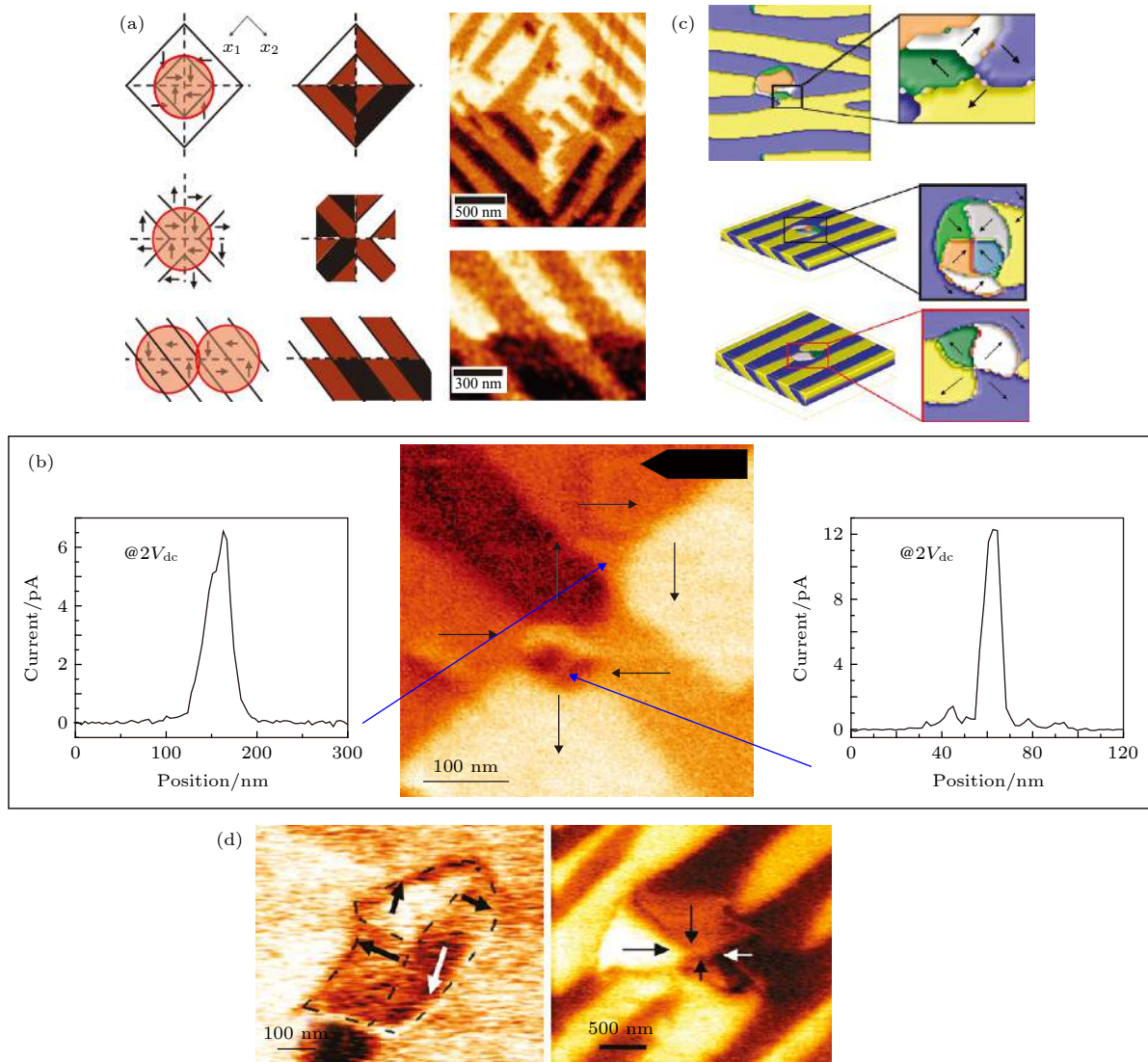


图 4 铁电薄膜中极性拓扑畴的导电性: PFM 导电探针在超薄 BFO 铁电薄膜诱导的通量闭合型畴结构 (a) 及其中心的导电性 (b)<sup>[65,66]</sup>; BFO 铁电薄膜中通量闭合型与中心发散 (收敛) 型畴可逆转换 (c) 及其导电性差异 (d)<sup>[24,68]</sup>

Fig. 4. Conductivity of polar topological domains in ferroelectric thin films. Creation (a) and conductivity (b) of the flux-closure domain in BFO films<sup>[65,66]</sup>; (c) flux-closure domain and center-divergent (convergent) domain in BiFeO<sub>3</sub> films and (d) their conductivity<sup>[24,68]</sup>.

利用 AFM 导电探针产生的局部电场在 BFO 铁电薄膜中诱导出涡旋-反涡旋对, 通过 PFM 研究了极化涡旋结构在纳米尺度上的演化过程, 实现了对极化涡旋拓扑畴结构的连续读和写, 为基于极性涡旋畴结构的非易失性存储器件和逻辑器件的设计与实现提供了实验依据.

PFM 技术是利用铁电材料的逆压电效用, 通过有限大小 (约 15 nm) 的通有高频交流电压的导电探针来进行畴结构测试, 空间分辨率受到很大限制, 难以观测到更小尺度的极性拓扑结构<sup>[81]</sup>. 随着先进的透射电子显微镜的快速发展, 研究人员可以从截面观察铁电薄膜中更小尺度的不同类型极化

拓扑畴结构. 2009 年, Jia 等<sup>[34]</sup> 首次利用球差校正的扫描透射电子显微镜在 PZT 超薄膜中畴壁与基底交界处观察到原子尺度的通量闭合型拓扑畴结构. 接着, Nelson 等<sup>[63]</sup> 采用同样的技术, 在多铁性 BFO 薄膜的畴壁附近也发现了类似的极化通量闭合型拓扑畴结构. 这种拓扑结构只出现在薄膜与基底的交界面附近, 说明这种拓扑结构的形成主要取决于退极化能量的作用. 最近, 文献<sup>[37, 82]</sup> 采用外延三明治结构将超薄的 BFO 薄膜夹在两层介电薄膜中间, 可以获得稳定的呈链状排列的极化涡旋畴<sup>[38]</sup>, 特别值得注意的是单个极化涡旋拓扑畴结构在尺寸上可以小至 4 nm, 如图 5 所示.

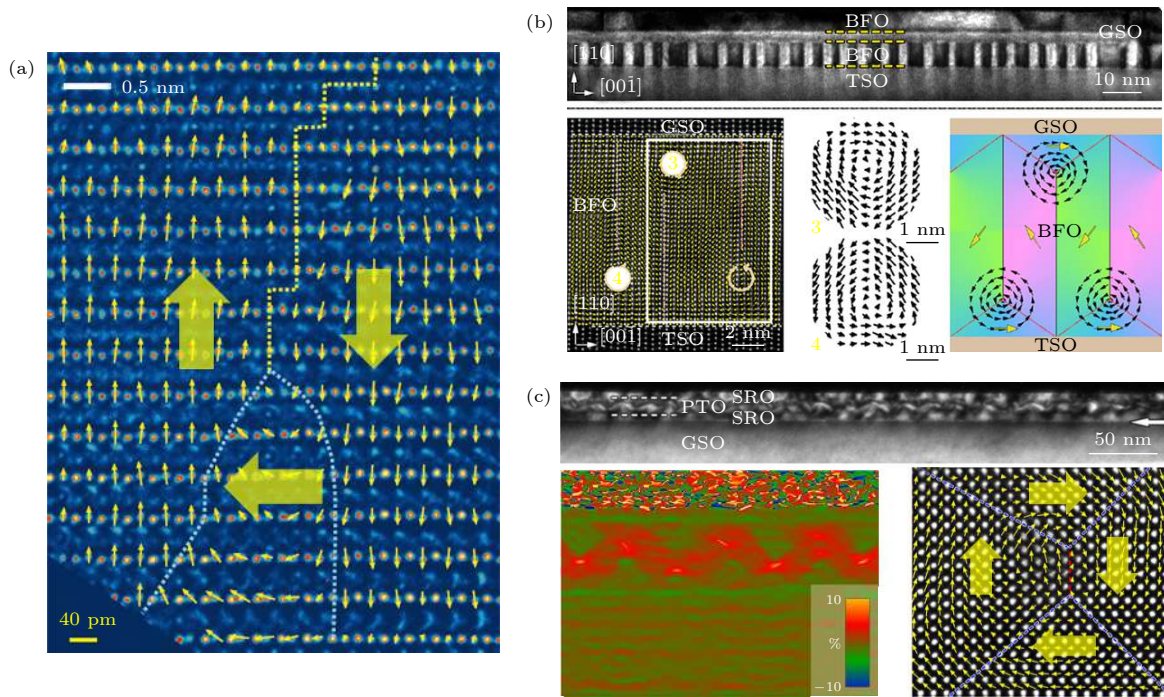


图 5 铁电薄膜中极性拓扑畴的 TEM 观察 (a) PZT 薄膜中通量闭合型拓扑畴<sup>[34]</sup>; (b) 超薄 BFO 薄膜中涡旋畴<sup>[82]</sup>; (c) 超薄 BFO 中的通量闭合型拓扑畴<sup>[37]</sup>

Fig. 5. Observation of the polar topological domains in ferroelectric thin films: (a) Flux-closure domains in ferroelectric PZT<sup>[34]</sup>; (b) vortex domains in ferroelectric BFO ultrathin films<sup>[82]</sup>; (c) flux-closure domains in ferroelectric BFO ultrathin films<sup>[37]</sup>.

磁性材料中的手性斯格明子拓扑畴结构给材料本身带来丰富物理特性,特别是在低功耗、超高密度(超过几十  $\text{Tb}\cdot\text{in}^{-2}$ )信息存储方面有潜在应用<sup>[14,59]</sup>.铁电材料中极性泡泡畴结构被认为是铁电性斯格明子的前体.根据 Kornev 等<sup>[61]</sup>的理论预测,为了使这类泡泡畴稳定,它们必须同时具有面内和面外的极化分量,并且极性泡泡畴和铁电体材料之间的界面必须具有极化旋转,以使偶极矩通量最小.Zhang 等<sup>[83]</sup>利用高分辨率 PFM 和原子分辨率 STEM 在超薄外延 PZT/STO/PZT 铁电三明治结构中观察到了一种新型的纳米级铁电畴,称为“气泡畴”,如图 6(a)所示,即约 10 nm 尺寸的侧向约束球体,其局部偶极矩的方向与周围铁电体材料的宏观极化方向相反.这是由于这些区域电荷与晶格自由度的相互作用,不相称的相位和对称性的破坏导致了局部极化旋转,从而使得气泡畴壁具有尼尔-布洛赫混合特征.另外,气泡区域的 PFM 电滞回线表明,在电场作用下,极性泡泡畴可以出现局部移动与合并,如图 6(b)所示.

研究者们也发现可以利用扫描探针显微镜 (SPM) 方法驱动上述纳米级铁电泡泡畴与圆柱形畴结构之间发生可逆转化.具体过程是通过 SPM 针尖施加机械应力,可以消除具有旋转极化的约

10 nm 球状泡泡拓扑畴.然后应用振幅和持续时间特定组合的电脉冲可以重建泡泡拓扑畴,过程如图 6(c)所示.这种简单而有效地在各种拓扑缺陷状态之间进行切换,对纳米电子传感器、存储器、逻辑器件和机电系统的应用具有重要意义<sup>[84]</sup>.

### 3.3 铁电/介电超晶格中的极性拓扑结构

在铁电纳米颗粒和超薄薄膜中观察到的极化拓扑畴结构多数是零星分布的通量闭合类型和涡旋状极性拓扑结构.在铁电纳米颗粒或岛状结构上很难形成稳定的涡旋拓扑畴结构,这一方面可能是由于退极化场不够大,不足以克服由于涡旋畴的形成或极化旋转所需要的能量消耗.另一方面也可能是由于表面电荷或点缺陷的过度屏蔽减小了退极化强度.研究人员从第一性原理理论上预言了铁电/介电超晶格薄膜中因为氧八面体旋转而出现极化涡旋结构<sup>[85-87]</sup>,铁电复合薄膜结构中可稳定存在极化斯格明子结构<sup>[88]</sup>.这样的拓扑结构由于丰富的物理特性和在自旋电子学中的广泛应用而引起了人们越来越多的兴趣.实验上在 2015 年获得了突破,Tang 等<sup>[35]</sup>将超薄 PTO 铁电薄膜限制在两个绝缘  $\text{SrTiO}_3$  (STO) 层之间,减小退极化场的屏蔽效应.即通过脉冲激光沉积方法在单晶  $\text{GdScO}_3$



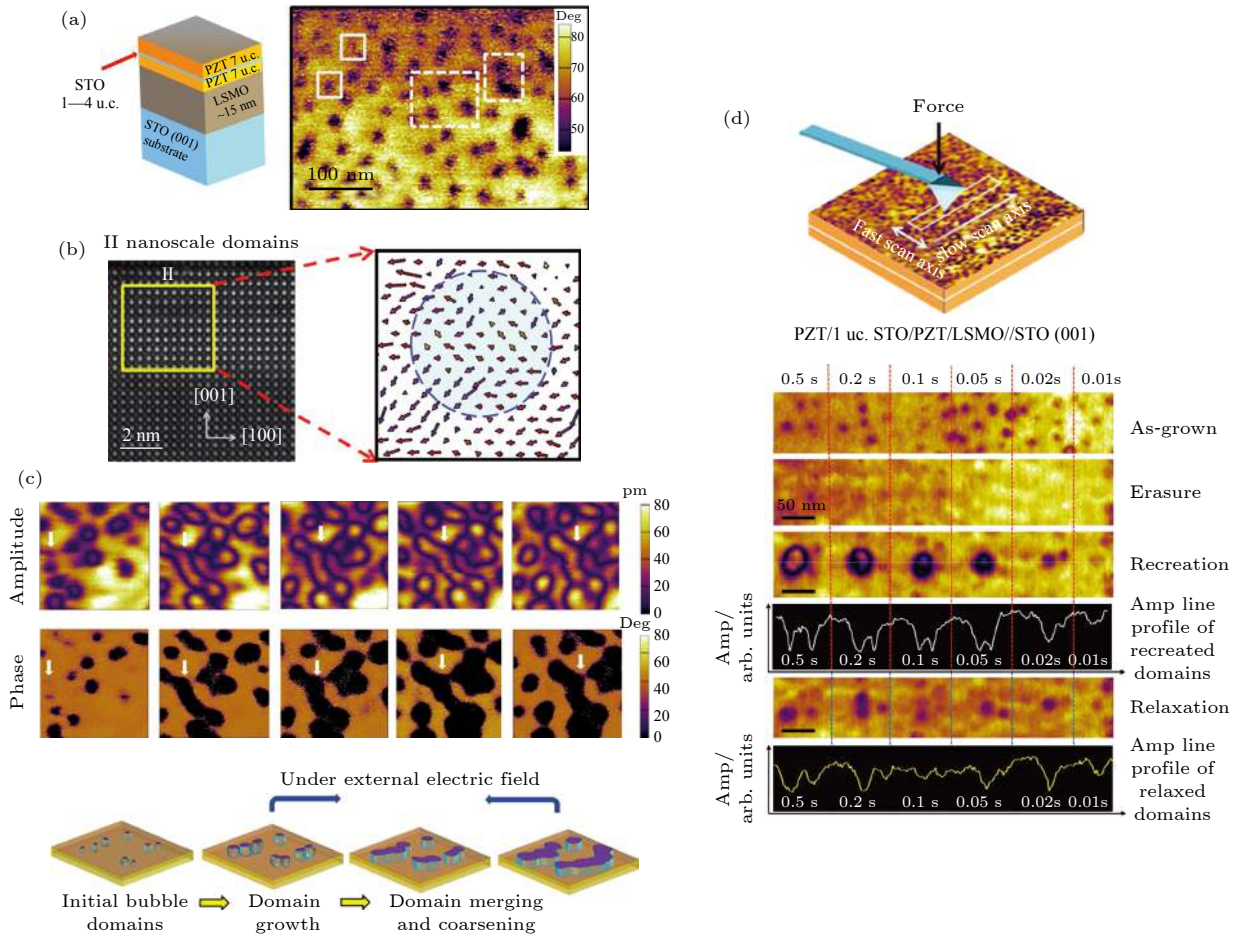


图 6 铁电薄膜中极性泡泡畴 (a) PZT 薄膜中极性泡泡畴; (b) 极性泡泡畴微结构; (c) 极性泡泡畴移动与合并<sup>[83]</sup>; (d) PFM 下极性泡泡畴擦与写<sup>[84]</sup>

Fig. 6. Observation of the polar bubble-like domains in ferroelectric thin films: (a) Polar bubble domains in PZT thin films; (b) structure of the bubble domains; (c) merging and coarsening of the polar bubble domains<sup>[83]</sup>; (d) erasing and recreation of the polar bubble domains<sup>[84]</sup>.

(GSO) 衬底上外延生长出 PTO/STO 超晶格, 利用 STEM 观察到了规则排列的畴量闭合型拓扑畴阵列 (图 7(a))<sup>[35–37]</sup>. 2016 年, Yadav 等<sup>[39]</sup> 将 PTO/STO 超晶格外延生长在单晶 DyScO<sub>3</sub> (DSO) 衬底上, 这些超晶格具有更薄的铁电 PTO 层 (约为 4 nm), 观察到了完美的极性涡旋阵列, 并表现出明显的手性特征<sup>[89]</sup>, Sun 等<sup>[90]</sup> 对这种小至 4 nm 的极性涡旋畴进行了亚单胞级精细表征, 具体如图 7(b) 所示. 结果表明减小尺寸约束是稳定极性涡旋结构的另一个重要因素, 在同等退极化场的屏蔽效应下, 更小的铁电 PTO 层厚度 (小于 10 个单胞) 有利于极化连续旋转, 形成稳定的极性涡旋畴结构. Hong 等<sup>[40]</sup> 通过相场理论模拟了在 DSO 衬底上外延生长的 (PTO)<sub>m</sub>/(STO)<sub>n</sub> (*m, n* 为单胞数) 超晶格中极性拓扑畴结构. 结果表明, 在不同的铁电、介电层厚度情况下, PTO/STO 超晶格中静电、弹性和极化梯度相关的能量项之间存在一种微

妙的竞争, 从而导致了与厚度相关的拓扑畴态, 见图 7(c). 研究者基于 Landau-Ginzburg 唯象理论的简化准二维分析模型预测了形成稳定畴量闭合畴和涡旋畴的厚度尺度窗口, 认为极化涡旋畴和畴量闭合畴的临界尺度比铁电体材料的畴壁本征宽度大一个数量级. 由于正常铁电体的畴壁应该是几个晶胞宽, 所以畴量闭合畴和极化涡旋畴的临界尺度应该分别约为 10 和 4 nm. 低于临界尺度, 退极化场非常强, 没有任何极性拓扑畴状态是稳定的, 因此会产生一个平面内的畴结构. 需要指出的是, 这一临界厚度尺度规律主要是由退极化能与畴壁能的竞争决定的, 通过它可以估算空间约束系统中涡旋畴或类似拓扑结构的特征尺度. 它也可以作为一个简单直观的设计规则, 用于搜索新的拓扑结构, 材料系统, 并为设计和调整涡旋和其他极性拓扑畴提供指导.

磁斯格明子是拓扑上非平凡的自旋结构, 在纳

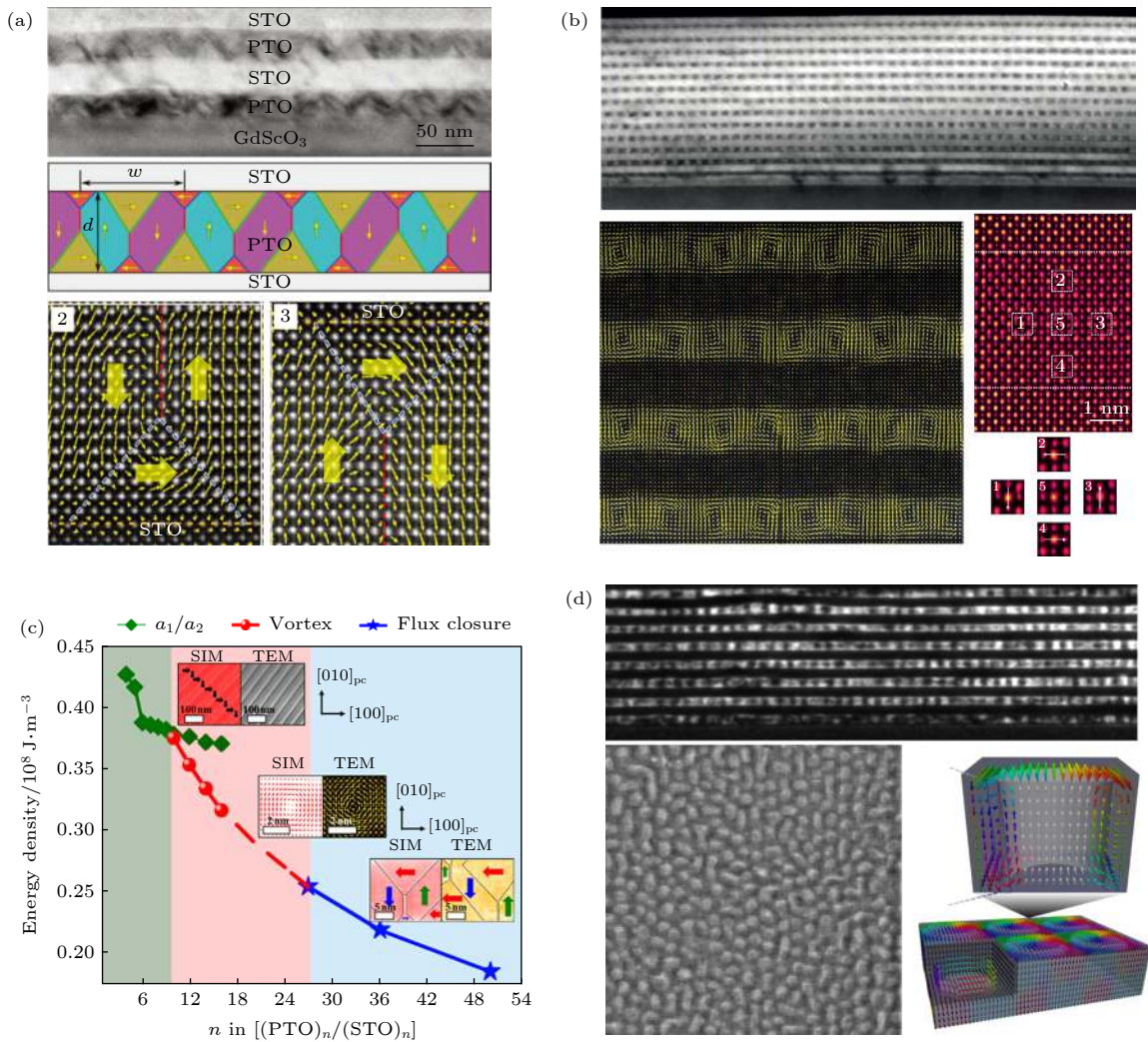


图 7 铁电超晶格 (PTO/STO) 中的拓扑畴结构 (a) PTO/STO 超晶格中通量闭合型拓扑畴阵列<sup>[35]</sup>; (b) PTO/STO 超晶格中极性涡旋拓扑畴阵列<sup>[39,90]</sup>; (c) PTO/STO 超晶格中拓扑畴结构演化相图<sup>[40]</sup>; (d) PTO/STO 超晶格中斯格明子拓扑畴结构<sup>[41]</sup>

Fig. 7. Polar topological domains in PTO/STO superlattices: (a) Flux-closure domain arrays in a PTO/STO superlattices on GdScO<sub>3</sub> substrate<sup>[35]</sup>; (b) polar vortex domain arrays in PTO/STO superlattices on DSO substrate<sup>[39,90]</sup>; (c) a calculated phase diagram for PTO<sub>m</sub>/STO<sub>n</sub> illustrating the length scales within which different topological states can be stabilized<sup>[40]</sup>; (d) polar skyrmion bubbles in a PTO/STO superlattices on STO substrate<sup>[41]</sup>.

米尺度的自旋电子器件中作为稳定的信息载体有着巨大的潜力. 长期以来, 研究人员一直想知道铁电体是否会呈现出类似于具有手性特征的磁性斯格明子拓扑结构, 对 PTO/STO 铁电超晶格的进一步探索导致了更多的发现, Das 等<sup>[41]</sup>采用 4D-STEM 技术深入地研究了外延生长在单晶 SrTiO<sub>3</sub> (STO) 衬底上的 (PTO)<sub>16</sub>/(STO)<sub>16</sub> 超晶格内的铁电极化分布, 见图 7(d). 结果表明, 在源自 STO 衬底失配应力可以忽略的条件下, 铁电层 PTO 中的极化分布显示铁电畴壁呈环状, 畴壁的旋转极化和畴壁内部的极化环形成一个整体, 如图 7(d) 中插图所示, 这种极化的旋转方向使偶极子的整体模式具有手性特征, 符合磁性斯格明子的关键特征.

同时相场模拟和第二原理计算 (second-principles calculations, 一种基于第一性原理可以模拟大尺度极化分布的方法)<sup>[41,91,92]</sup>表明, 这种极性斯格明子的拓扑数为+1, 共振软 X 射线衍射实验显示了圆二色性, 证实了宏观手性特征.

在有限铁电系统中发现的极性斯格明子激发了新的拓扑状态的研究热情, 这些拓扑状态与磁拓扑状态类似, 但尺度更小. 这些奇异态不仅为更致密、更快的信息存储器件带来了希望, 而且在调控铁电体的整体物理行为方面也起着重要的作用. 例如, 与涡旋拓扑结构相关联的负电容行为, 这可能有助于降低晶体管的功耗<sup>[92,93]</sup>. 当然还有许多其他问题和挑战, 包括如何实现单个极性斯格明子转



换、移动、创建和消除等<sup>[94]</sup>, 以及相应的转换能量、速度和保持性等。

## 4 铁电材料中极性拓扑结构的外场调控

### 4.1 极性拓扑结构的整体拓扑相变调控

在 PTO/STO 铁电超晶格中, 由于其介电层 STO 绝缘界面处的退极化场和衬底 DSO 的外延约束所产生的静电能和弹性能的多能量竞争, 而形成极性涡旋阵列<sup>[39]</sup>. 研究者们进一步发现, 改变超晶格层厚度, 在 PTO/STO 超晶格中发现了新型手性极性涡旋相与相应铁电相共存的复杂多维结构, 能够产生有趣的物理响应, 如手性、负电容和大的压电响应<sup>[92,95,96]</sup>. 在衬底外延应力约束下, 对于短周期超晶格 (PTO<sub>n</sub>/STO<sub>n</sub>,  $n = 4-10$  个单胞), PFM 和同步辐射 RSM 研究结果显示完全的面内取向极化, 与传统  $a_1/a_2$  铁电畴结构一致. 但

对于  $n = 16$  的超晶格, PFM 和 RSM 测试结果表明, 沿  $[100]_{pc}$  方向形成周期性条带结构, 见图 8(a), 由铁电相 ( $a_1/a_2$  畴) 与涡旋相交替排列形成<sup>[95]</sup>. 超晶格的 TEM 截面样观测结果, 如图 8(b) 所示, 也显示涡旋结构和  $a_1/a_2$  畴共存, 揭示了铁电相与涡旋相的较窄交界区域<sup>[96]</sup>. 如图 8(c) 所示, 相场模拟重现了这一过程, 由于涡旋中心的偏移, 整个涡旋结构呈现出平面内的净极化, 该净极化方向与相邻  $a$  畴的平面方向一致, 使得涡旋的平面内分量与  $a$  畴极化合并形成连续边界. Damodaran 等<sup>[95]</sup> 也报道了这种混合相结构在外场激励下显示出可控的响应. 如图 8(d) 所示, 利用 AFM 导电探针将正向直流偏压作用于样品时, 混合相结构转变为均匀低压电响应的纯涡旋相; 在负直流偏压的作用下, 由此产生的纯涡旋相可反过来转换为铁电和涡旋相的混合结构. 这种转变过程也通过温度相关的原位同步辐射 X 射线衍射实验得到了证实, 如图 8(e) 所示, 在样品温度高至约 200 °C 时, 混合相变成纯

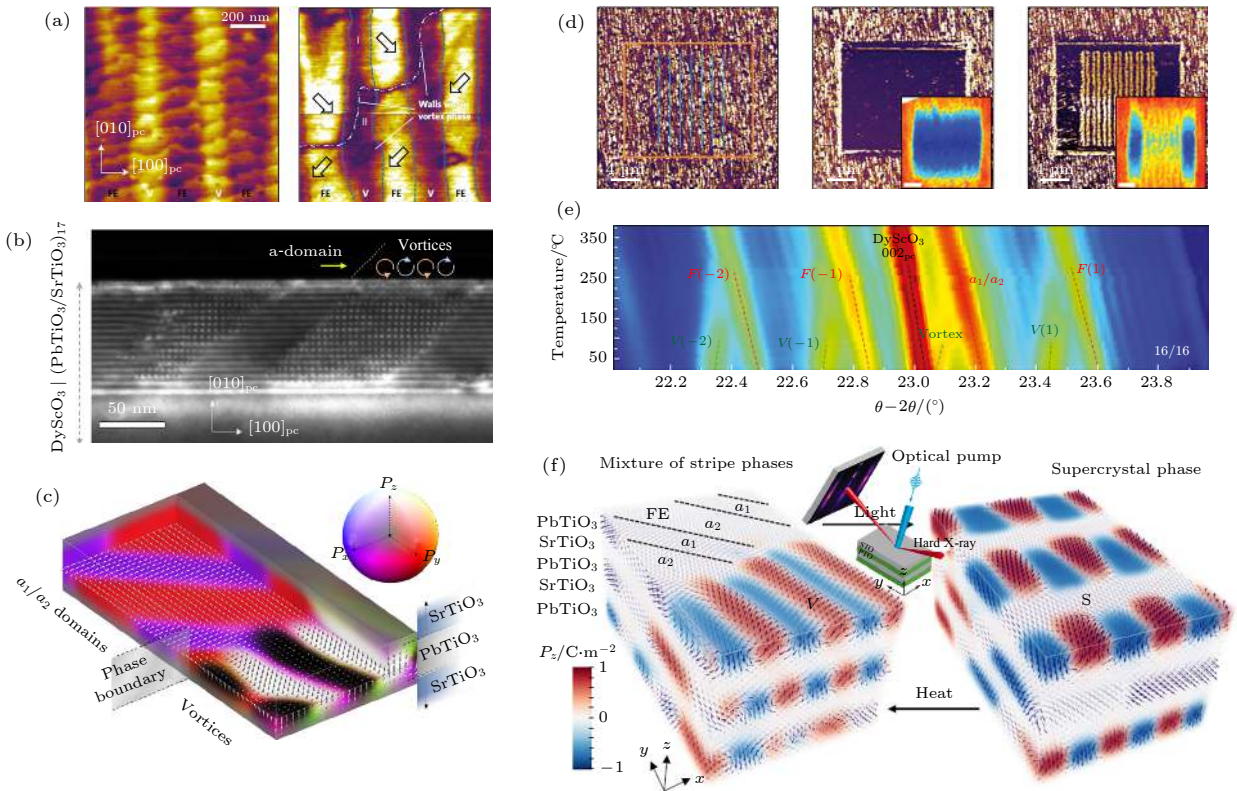


图 8 铁电超晶格中的拓扑混合相结构及外场调控 (a) AFM 和 PFM 显示铁电相  $a_1/a_2$  与涡旋相分布<sup>[95]</sup>; (b) TEM 和 (c) 理论计算显示铁电相  $a_1/a_2$  与涡旋相共存<sup>[96]</sup>; PTO/STO 超晶格中拓扑畴结构的 (d) 外电场、(e) 温度和 (f) 光辐射的可逆调控<sup>[95,97]</sup>

Fig. 8. Topological mixed phase structure and field control in ferroelectric superlattice: (a) Lateral piezoresponse force studies revealing the distribution of  $a_1/a_2$  and vortex phases<sup>[95]</sup>; (b) dark field TEM image showing ferroelectric vortices and  $a_1/a_2$ -domain coexistence<sup>[96]</sup>; (c) phase field model of the  $a_1/a_2$ -domain/vortex boundary<sup>[96]</sup>; (d) reversible electric-field control of ferroelectric and vortex phases<sup>[95,97]</sup>; (e) temperature-dependent synchrotron X-ray diffraction on reversible switching of ferroelectric and vortex phases<sup>[95,97]</sup>; (f) reversible sub-picosecond optical pulses control of ferroelectric mixture and supercrystal structure<sup>[95,97]</sup>.

铁电  $a_1/a_2$  相, 在高于 325 °C 温度时, 样品变成顺电相, 当温度缓慢降到室温后, 样品恢复到原来的混合相结构. 然而, 温度调控的相变是非平衡相, 是短暂的中间过程, 所以, 如何将它们稳定为持久状态是实现操控与相结构相关的新奇物理特性的前提. Stoica 等<sup>[97]</sup> 利用亚皮秒超快光脉冲激光激励可以使 PTO/STO 超晶格中的铁电相和涡旋相的混合结构转变成稳定的超晶结构. 该结构相在室温条件下可以稳定存在, 并可以通过加热方式恢复到原混合相结构, 转变过程如图 8(f) 所示. 这种可逆外场调控的铁电相和涡旋相转变提供了新的应用机会. 例如, 纯涡旋相结构表现出数量级大的压敏响应和非线性光学效应, 通过擦写涡旋畴并利用外加电场控制混合相成份, 可以控制材料的其他特性, 如手性. 电场控制的手性和其他耦合特性将为凝聚态物理和多功能器件的研制开辟新的领域.

## 4.2 单个极性拓扑结构的外场调控

材料中有序极性拓扑结构能够产生奇异的物理响应, 其单个极性拓扑结构的外场操控受到了广泛关注. 最近在 PTO/SSTO 超晶格中观察到了多种极性拓扑畴结构, 如手性极性涡旋和极性斯格明子, 并对这些极性拓扑结构的外场响应进行了深入研究. 单个极性拓扑结构可以小至 3.2 nm, 实现对于单个极性拓扑畴的外场可控操控迄今为止仍然存在巨大的挑战. 如何实现单个极性拓扑畴的可控拓扑相变? 最近 Pereira Goncalves 等<sup>[98]</sup> 基于第二原理计算, 提出了在 PTO 材料中利用布洛赫畴畴壁结构创建极性斯格明子拓扑畴的方法 (见图 9(a)), 并且实现了极性斯格明子的电场可控调控. 文献 [88, 94] 利用第一性原理计算在特殊构型的铁电复合材料中对极性涡旋结构沿法向方向施

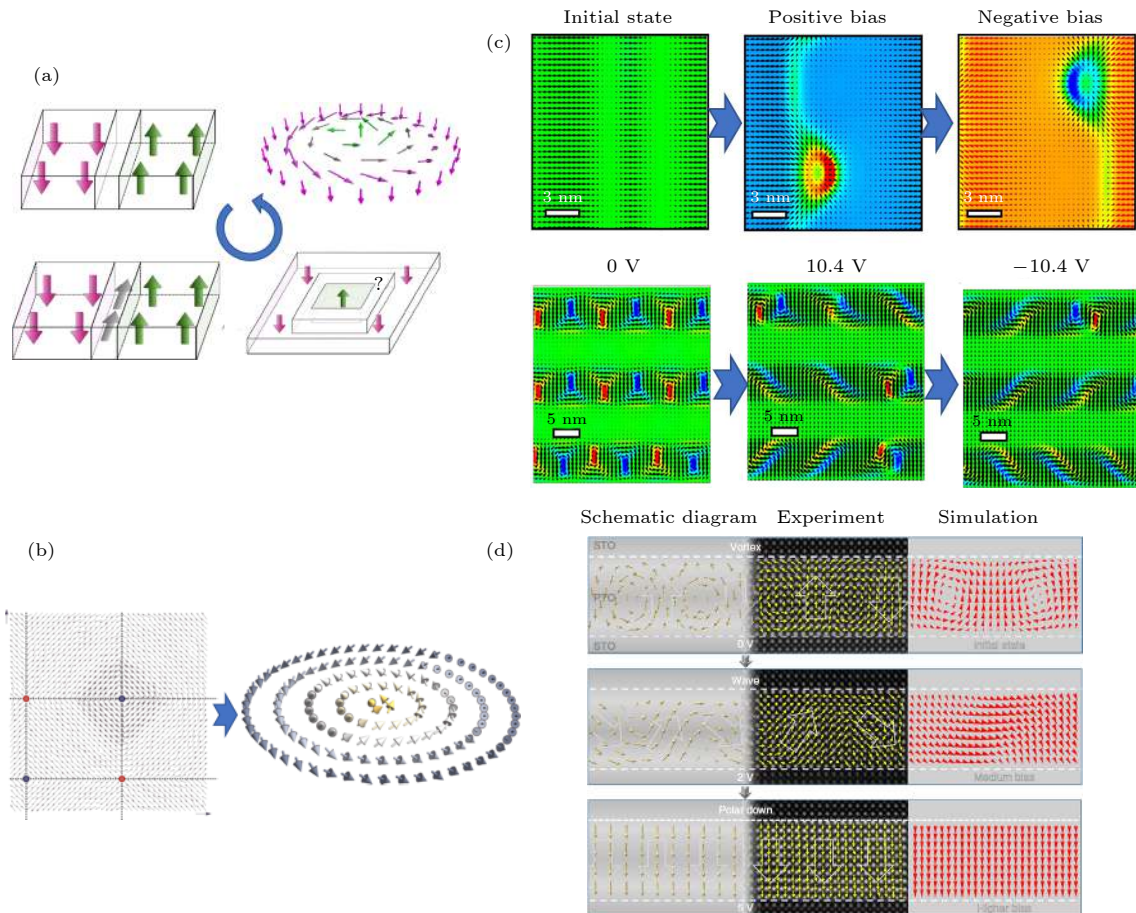


图 9 极性拓扑畴结构的外场调控 (a) 创建极性斯格明子的理论方法<sup>[98]</sup>; (b) 铁电复合材料中极性涡旋与斯格明子之间的拓扑相变<sup>[88]</sup>; (c) 铁电超晶格中极性涡旋与斯格明子之间拓扑相变的相场模拟<sup>[58]</sup>; (d) 铁电超晶格中极性涡旋原位外电场调控<sup>[99]</sup>

Fig. 9. Topological mixed phase structure and field control in ferroelectric superlattice: (a) Theoretical guidelines to create polar skyrmions<sup>[98]</sup>; (b) topological transition between polar vortex and skyrmion in ferroelectric nanocomposites<sup>[88]</sup>; (c) phase field model of the topological transition between polar vortex and skyrmion in ferroelectric PTO/STO superlattices<sup>[58]</sup>; (d) manipulating topological transformations of polar vortices in ferroelectric superlattices<sup>[99]</sup>.



加一个外电场,如图 9(b)所示,得到了小于几个纳米的稳定的极性斯格明子拓扑结构,实现了极性涡旋畴与极性斯格明子之间的拓扑相变.在 PTO/SSTO 超晶格体系中, Hong 和 Chen<sup>[58]</sup> 利用相场模拟发现在外加正或负电场作用下,从超晶格表面观察,极性涡旋阵列结构可以与极性斯格明子结构之间发生可逆转换,并且后者有较宽的稳定窗口.而从截面观察,极性涡旋阵列结构可以转换成  $a/c$  畴结构,如图 9(c)所示,这个过程类似于超流体中 Plateau-Raleigh 相变.最近,对于极性拓扑畴结构的可控操控也获得了实验上的突破, Du 等<sup>[99]</sup> 利用超细导电探针对极性拓扑畴结构施加一个非接触式偏置电场,在原位 TEM 下实时观测到了极性拓扑结构的原子级拓扑相变过程.结果显示,在外加电场下,极性涡旋畴先转变成波浪形畴结构,最终变成单一取向的单畴结构(图 9(d)).这些发现将极大地推动极性拓扑畴结构在新一代微电子器件上的应用.

## 5 展 望

最近针对极性拓扑结构的理论与实验研究主要集中在外延 PTO/STO 超晶格系统上,初步的研究显示,多种超小尺寸的极性拓扑结构已经在实验中观察到,并通过理论计算予以证实;外场(电、光、热等)可以控制拓扑结构与经典铁电结构相互转换,也可以调控单个极性涡旋拓扑结构.但我们对这些新兴极性拓扑结构的研究和理解才刚刚开始,也可能有许多其他材料系统可以用来产生其他新的极性拓扑结构,外场调控也可能带来新的现象和潜在应用.首先,在 PTO/STO 超晶格材料体系基础上,可以通过改变介电层和铁电层材料,精细调控超晶格体系的静电、弹性和极化梯度能量项的新竞争平衡,从而推动更多奇异拓扑结构的形成.进一步探索不对称超晶格体系,例如对不对称“三色”超晶格的理论探索表明可以得到更多新颖的极性拓扑结构<sup>[100]</sup>.甚至超越铁电材料体系,在磁性或多铁系统中精确调控类似的能量竞争平衡关系.例如,基于介电/铁磁或多铁结构的超晶格探索磁性自旋与铁电极化拓扑结构的多场耦合效应.其次,对铁电超晶格 PTO/STO 体系(或相关体系)中的极性拓扑结构的 TEM 方法观测需要将样品切成薄片,对样品本征结构有一定的影响,迫切需要探

索更先进的方法实现极性拓扑结构更高精度表征,并进行类似于磁性自旋拓扑结构的自由调控<sup>[101]</sup>.同时在拓扑相变过程中可能捕捉到存在的其他类型极化拓扑畴,这些问题及其最终的实现将需要在实验合成和表征、计算和建模方法方面进行深入研究.最后,极性拓扑结构的手性特征及其外场耦合作用已被证实,设计一种简单可行的方式来改变极性结构,并实现纳米级手性结构的操控,将极大推动极性拓扑结构在高密度逻辑存储器件、电容传感、近场光学传感和磁电探测等方面的应用.

## 参考文献

- [1] Catalan G, Seidel J, Ramesh R, Scott J F 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 119
- [2] Heron J T, Schlom D G, Ramesh R 2014 *Appl. Phys. Rev.* **1** 021303
- [3] Scott J F, Hershkovitz A, Ivry Y, Lu H, Gruverman A, Gregg J M 2017 *Appl. Phys. Rev.* **4** 041104
- [4] Scott J F 2016 *Ferroelectrics* **503** 117
- [5] Scott J F, Gardner J 2018 *Mater. Today* **21** 553
- [6] 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
- [7] Spaldin N A, Ramesh R 2019 *Nat. Mater.* **18** 203
- [8] Ramesh R, Schlom D G 2019 *Nat. Rev. Mater.* **4** 257
- [9] Hsu S L, McCarter M R, Dai C, Hong Z, Chen L Q, Nelson C T, Martin L W, Ramesh R 2019 *Adv. Mater.* **31** 1901014
- [10] Scott J F 2007 *Science* **315** 954
- [11] Chiu C H, Huang C W, Hsieh Y H, Chen J Y, Chang C F, Chu Y H, Wu W W 2017 *Nano Energy* **34** 103
- [12] Pešić M, Fengler F P G, Larcher L, Padovani A, Schenk T, Grimley E D, Sang X, LeBeau J M, Slesazek S, Schroeder U, Mikolajick T 2016 *Adv. Funct. Mater.* **26** 4601
- [13] Waldrop M M 2016 *Nature* **530** 144
- [14] Fert A, Cros V, Sampaio J 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 152
- [15] Mühlbauer S, Binz B, Jonietz F, Pfleiderer C, Rosch A, Neubauer A, Georgii R, Böni P 2009 *Science* **323** 915
- [16] Röbber U K, Bogdanov A N, Pfleiderer C 2006 *Nature* **442** 797
- [17] Ruotolo A, Cros V, Georges B, Dussaux A, Grollier J, Deranlot C, Guillemet R, Bouzehouane K, Fusil S, Fert A 2009 *Nat. Nanotechnol.* **4** 528
- [18] Sampaio J, Cros V, Rohart S, Thiaville A, Fert A 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 839
- [19] Nagaosa N, Tokura Y 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 899
- [20] Jiang W, Upadhyaya P, Zhang W, Yu G, Jungfleisch M B, Fradin F Y, Pearson J E, Tserkovnyak Y, Wang K L, Heinonen O, te Velthuis S G E, Hoffmann A 2015 *Science* **349** 283
- [21] Nayak A K, Kumar V, Ma T, Werner P, Pippel E, Sahoo R, Damay F, Röbber U K, Felser C, Parkin S S P 2017 *Nature* **548** 561
- [22] Naumov I I, Bellaiche L, Fu H 2004 *Nature* **432** 737
- [23] Ivry Y, Chu D P, Scott J F, Durkan C 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 207602
- [24] McGilly L J, Schilling A, Gregg J M 2010 *Nano Lett.* **10**

- 4200
- [25] McQuaid R G P, McGilly L J, Sharma P, Gruverman A, Gregg J M 2011 *Nat. Commun.* **2** 404
- [26] Chang L W, Nagarajan V, Scott J F, Gregg J M 2013 *Nano Lett.* **13** 2553
- [27] McQuaid R G P, Gruverman A, Scott J F, Gregg J M 2014 *Nano Lett.* **14** 4230
- [28] 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
- [29] Ma J, Ma J, Zhang Q, Peng R, Wang J, Liu C, Wang M, Li N, Chen M, Cheng X, Gao P, Gu L, Chen L Q, Yu P, Nan C W, Zhang J 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 947
- [30] Kim K E, Jeong S, Chu K, Lee J H, Kim G Y, Xue F, Koo T Y, Chen L Q, Choi S Y, Ramesh R, Yang C H 2018 *Nat. Commun.* **9** 403
- [31] Kim J, You M, Kim K E, Chu K, Yang C H 2019 *npj Quantum Mater.* **4** 29
- [32] Kim K E, Kim Y J, Zhang Y, Xue F, Kim G Y, Song K, Choi S Y, Liu J M, Chen L Q, Yang C H 2018 *Phys. Rev. Mater.* **2** 084412
- [33] 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
- [34] Jia C L, Urban K W, Alexe M, Hesse D, Vrejoiu I 2011 *Science* **331** 1420
- [35] 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
- [36] Liu Y, Wang Y J, Zhu Y L, Lei C H, Tang Y L, Li S, Zhang S R, Li J, Ma X L 2017 *Nano Lett.* **17** 7258
- [37] Li S, Zhu Y L, Wang Y J, Tang Y L, Liu Y, Zhang S R, Ma J Y, Ma X L 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 052901
- [38] Peters J J P, Apachitei G, Beanland R, Alexe M, Sanchez A M 2016 *Nat. Commun.* **7** 13484
- [39] 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
- [40] 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, Ramesh R, Chen L Q 2017 *Nano Lett.* **17** 2246
- [41] 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, Müller D A, Chen L Q, Junquera J, Martin L W, Ramesh R 2019 *Nature* **568** 368
- [42] Kittel C 1946 *Phys. Rev.* **70** 965
- [43] Mermin N D 1979 *Rev. Mod. Phys.* **51** 591
- [44] Yu X, Mostovoy M, Tokunaga Y, Zhang W, Kimoto K, Matsui Y, Kaneko Y, Nagaosa N, Tokura Y 2012 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **109** 8856
- [45] Kamionka T, Martens M, Chou K W, Curcic M, Drews A, Schütz G, Tylliszczak T, Stoll H, Van Waeyenberge B, Meier G 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 137204
- [46] Kuepper K, Buess M, Raabe J, Quitmann C, Fassbender J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 167202
- [47] Krüger B, Drews A, Bolte M, Merkt U, Pfannkuche D, Meier G 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 07A501
- [48] Drews A, Krüger B, Meier G, Bohlens S, Bocklage L, Matsuyama T, Bolte M 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 062504
- [49] Gliga S, Yan M, Hertel R, Schneider C M 2008 *Phys. Rev. B* **77** 060404
- [50] Shigeto K, Okuno T, Mibu K, Shinjo T, Ono T 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 4190
- [51] Martens M, Kamionka T, Drews A, Krüger B, Meier G 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 013917
- [52] Mironov V L, Ermolaeva O L, Gusev S A, Klimov A Y, Rogov V V, Gribkov B A, Udalov O G, Fraerman A A, Marsh R, Checkley C, Shaikhaidarov R, Petrashov V T 2010 *Phys. Rev. B* **81** 094436
- [53] Yu X Z, Onose Y, Kanazawa N, Park J H, Han J H, Matsui Y, Nagaosa N, Tokura Y 2010 *Nature* **465** 901
- [54] Yu X Z, Kanazawa N, Onose Y, Kimoto K, Zhang W Z, Ishiwata S, Matsui Y, Tokura Y 2011 *Nat. Mater.* **10** 106
- [55] Du H, Zhao X, Rybakov F N, Borisov A B, Wang S, Tang J, Jin C, Wang C, Wei W, Kiselev N S, Zhang Y, Che R, Blügel S, Tian M 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 197203
- [56] Hou Z, Zhang Q, Xu G, Gong C, Ding B, Wang Y, Li H, Liu E, Xu F, Zhang H, Yao Y, Wu G, Zhang X X, Wang W 2018 *Nano Lett.* **18** 1274
- [57] Wang W, Zhang Y, Xu G, Peng L, Ding B, Wang Y, Hou Z, Zhang X, Li X, Liu E, Wang S, Cai J, Wang F, Li J, Hu F, Wu G, Shen B, Zhang X X 2016 *Adv. Mater.* **28** 6887
- [58] Hong Z, Chen L Q 2018 *Acta Mater.* **152** 155
- [59] Parkin S S P, Hayashi M, Thomas L 2008 *Science* **320** 190
- [60] Tian G, Yang W, Chen D, Fan Z, Hou Z, Alexe M, Gao X 2019 *National Sci. Rev.* **6** 684
- [61] Kornev I, Fu H, Bellaiche L 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 196104
- [62] Prosandeev S, Ponomareva I, Kornev I, Naumov I, Bellaiche L 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 237601
- [63] Nelson C T, Winchester B, Zhang Y, Kim S-J, Melville A, Adamo C, Folkman C M, Baek S H, Eom C B, Schlom D G, Chen L Q, Pan X Q 2011 *Nano Lett.* **11** 828
- [64] McGilly L J, Gregg J M 2011 *Nano Lett.* **11** 4490
- [65] Balke N, Winchester B, Ren W, Chu Y H, Morozovska A N, Eliseev E A, Huijben M, Vasudevan R K, Maksymovych P, Britson J, Jesse S, Kornev I, Ramesh R, Bellaiche L, Chen L Q, Kalinin S V 2012 *Nat. Phys.* **8** 81
- [66] Balke N, Choudhury S, Jesse S, Huijben M, Chu Y H, Baddorf A P, Chen L Q, Ramesh R, Kalinin S V 2009 *Nat. Nanotechnol.* **4** 868
- [67] Li Y, Jin Y, Lu X, Yang J C, Chu Y H, Huang F, Zhu J, Cheong S W 2017 *NPJ Quantum Mater.* **2** 43
- [68] Vasudevan R K, Chen Y C, Tai H H, Balke N, Wu P, Bhattacharya S, Chen L Q, Chu Y H, Lin I N, Kalinin S V, Nagarajan V 2011 *ACS Nano* **5** 879
- [69] Lin S Z, Wang X, Kamiya Y, Chern G-W, Fan F, Fan D, Casas B, Liu Y, Kiryukhin V, Zurek W H, Batista C D, Cheong S W 2014 *Nat. Phys.* **10** 970
- [70] Kutka R, Trebin H R, Kiemes M 1989 *J. Phys. France* **50** 861
- [71] Naumov I, Fu H 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 077603
- [72] Naumov I, Bratkovsky A M 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 107601
- [73] Naumov I I, Fu H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 197601
- [74] Prosandeev S, Ponomareva I, Naumov I, Kornev I, Bellaiche L 2008 *J. Phys. Condens. Matter* **20** 193201
- [75] Chen D P, Zhang Y, Zhang X M, Lin L, Yan Z B, Gao X S, Liu J M 2017 *J. Appl. Phys.* **122** 044103
- [76] Morelli A, Johann F, Burns S R, Douglas A, Gregg J M 2016 *Nano Lett.* **16** 5228
- [77] Tian G, Chen D, Fan H, Li P, Fan Z, Qin M, Zeng M, Dai J, Gao X, Liu J M 2017 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **9** 37219
- [78] Li Z, Wang Y, Tian G, Li P, Zhao L, Zhang F, Yao J, Fan



- H, Song X, Chen D, Fan Z, Qin M, Zeng M, Zhang Z, Lu X, Hu S, Lei C, Zhu Q, Li J, Gao X, Liu J M 2017 *Sci. Adv.* **3** e1700919
- [79] Schilling A, Byrne D, Catalan G, Webber K G, Genenko Y A, Wu G S, Scott J F, Gregg J M 2009 *Nano Lett.* **9** 3359
- [80] Matzen S, Nesterov O, Rispens G, Heuver J A, Biegalski M, Christen H M, Noheda B 2014 *Nat. Commun.* **5** 4415
- [81] Gruverman A, Alexe M, Meier D 2019 *Nat. Commun.* **10** 1661
- [82] Geng W, Guo X, Zhu Y, Tang Y, Feng Y, Zou M, Wang Y, Han M, Ma J, Wu B, Hu W, Ma X 2018 *ACS Nano* **12** 11098
- [83] Zhang Q, Xie L, Liu G, Prokhorenko S, Nahas Y, Pan X, Bellaiche L, Gruverman A, Valanoor N 2017 *Adv. Mater.* **29** 1702375
- [84] Zhang Q, Prokhorenko S, Nahas Y, Xie L, Bellaiche L, Gruverman A, Valanoor N 2019 *Adv. Funct. Mater.* **29** 1808573
- [85] Sichuga D, Ren W, Prosandeev S, Bellaiche L 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 207603
- [86] Aguado-Puente P, Junquera J 2012 *Phys. Rev. B* **85** 184105
- [87] Bousquet E, Dawber M, Stucki N, Lichtensteiger C, Hermet P, Gariglio S, Triscone J-M, Ghosez P 2008 *Nature* **452** 732
- [88] Nahas Y, Prokhorenko S, Louis L, Gui Z, Kornev I, Bellaiche L 2015 *Nat. Commun.* **6** 8542
- [89] Shafer P, García-Fernández P, Aguado-Puente P, Damodaran A R, Yadav A K, Nelson C T, Hsu S L, Wojdel J C, Íñiguez J, Martin L W, Arenholz E, Junquera J, Ramesh R 2018 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **115** 915
- [90] Sun Y, Abid A Y, Tan C, Ren C, Li M, Li N, Chen P, Li Y, Zhang J, Zhong X, Wang J, Liao M, Liu K, Bai X, Zhou Y, Yu D, Gao P 2019 *Sci. Adv.* **5** eaav4355
- [91] García-Fernández P, Wojdel J C, Íñiguez J, Junquera J 2016 *Phys. Rev. B* **93** 195137
- [92] Yadav A K, Nguyen K X, Hong Z, García-Fernández P, Aguado-Puente P, Nelson C T, Das S, Prasad B, Kwon D, Cheema S, Khan A I, Hu C, Íñiguez J, Junquera J, Chen L Q, Muller D A, Ramesh R, Salahuddin S 2019 *Nature* **565** 468
- [93] Zubko P, Wojdel J C, Hadjimichael M, Fernandez-Pena S, Sené A, Luk'yanchuk I, Triscone J M, Íñiguez J 2016 *Nature* **534** 524
- [94] Zubko P 2019 *Nature* **568** 322
- [95] Damodaran A R, Clarkson J D, Hong Z, Liu H, Yadav A K, Nelson C T, Hsu S L, McCarter M R, Park K D, Kravtsov V, Farhan A, Dong Y, Cai Z, Zhou H, Aguado-Puente P, Garcia-Fernandez P, Iniguez J, Junquera J, Scholl A, Raschke M B, Chen L Q, Fong D D, Ramesh R, Martin L W 2017 *Nat. Mater.* **16** 1003
- [96] Nelson C T, Hong Z, Yadav A K, Damodaran A R, Hsu S L, Clarkson J D, Chen L Q, Martin L W, Ramesh R 2018 *Microsc. Microanal.* **24** 1638
- [97] Stoica V A, Laanait N, Dai C, Hong Z, Yuan Y, Zhang Z, Lei S, McCarter M R, Yadav A, Damodaran A R, Das S, Stone G A, Karapetrova J, Walko D A, Zhang X, Martin L W, Ramesh R, Chen L Q, Wen H, Gopalan V, Freeland J W 2019 *Nat. Mater.* **18** 377
- [98] Pereira Gonçalves M A, Escorihuela-Sayalero C, Garcia-Fernández P, Junquera J, Íñiguez J 2019 *Sci. Adv.* **5** eaau7023
- [99] Du K, Zhang M, Dai C, Zhou Z N, Xie Y W, Ren Z H, Tian H, Chen L Q, Van Tendeloo G, Zhang Z 2019 *Nat. Commun.* **10** 4864
- [100] Hong Z, Chen L Q 2019 *Acta Mater.* **164** 493
- [101] Je S G, Vallobra P, Srivastava T, Rojas-Sánchez J C, Pham T H, Hehn M, Malinowski G, Baraduc C, Auffret S, Gaudin G, Mangin S, Bésa H, Boule O 2018 *Nano Lett.* **18** 7362

SPECIAL TOPIC—Dielectric materials and physics

# Polar topological structures in ferroelectric materials\*

Tan Cong-Bing<sup>1)2)</sup> Zhong Xiang-Li<sup>2)</sup> Wang Jin-Bin<sup>2)†</sup>

1) (*School of Physics and Electronic Science, Hunan University of Science and Technology, Xiangtan 411201, China*)

2) (*School of Materials Science and Engineering, Xiangtan University, Xiangtan 411105, China*)

( Received 28 February 2020; revised manuscript received 27 March 2020 )

## Abstract

Spin topologies, including flow-closure, vortex, meron, skyrmion and other spin configurations, are usually found in magnetic materials. The emergence of the topological structures will trigger a number of intriguing functionalities and physical properties. Recent studies have shown that the trival domain structures can be transformed into polar topological domain structures under certain boundary conditions, such as size-confining, interfacial coupling, and epitaxial strain. In this paper, we review the observations of polar topologies and their formation mechanism in ferroelectric nanoparticles, thin films, and superlattice films, and focus on the intriguing properties, including ferroelectric, piezoelectric, dielectric, and photoelectric performances, which arise from the formation of polar topologies. We also review the highlights of recent studies of the manipulations and evolutions of polar topologies under the external field loading in ferroelectric materials. Finally, the future research directions of polar topological structure and potential application directions are proposed.

**Keywords:** ferroelectric materials, domain, polar topologies, manipulations

**PACS:** 77.80.Dj, 75.70.Kw, 77.84.-s, 75.60.Ch

**DOI:** [10.7498/aps.69.20200311](https://doi.org/10.7498/aps.69.20200311)

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11875229, 51872251).

† Corresponding author. E-mail: [jbwang@xtu.edu.cn](mailto:jbwang@xtu.edu.cn)