文章编号:1000-6281(2021)05-0564-07

# 拓扑涡旋与应变的弱关联性研究

宫风辉<sup>1,2#</sup>,陈雨亭<sup>1,2#</sup>,朱银莲<sup>3</sup>,唐云龙<sup>1</sup>,石彤形<sup>1,2</sup>,马秀良<sup>1,4\*</sup> (1.中国科学院金属研究所 沈阳材料科学国家研究中心,辽宁 沈阳 110016;2.中国科学技术大学 材料科学与工程学院,辽宁 沈阳 110016;3.松山湖材料实验室,广东 东莞 523808; 4.兰州理工大学 有色金属先进加工与循环国家重点实验室,甘肃 兰州 730050)

摘 要 应变工程作为调控铁弹畴的一个重要手段一直受到广泛的关注,但应变对拓扑极性结构涡旋的影响 一直不清晰。本文通过采用不同的单晶衬底对 PbTiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> 超晶格施加不同的应变,利用像差校正透射电子显 微术系统性地研究了应变对涡旋的影响。衍射衬度分析与选区电子衍射表明在压应变条件下也存在周期性涡旋 阵列,这推翻了原来只有拉伸应变能够促进涡旋形成的认知。除此之外,随着拉应变的增大,涡旋的核心与涡旋的 周期没有明显的变化,且涡旋具有较强的时间稳定性。实验结果表明应变对拓扑涡旋结构的影响呈现一种弱相关 性。本研究澄清了应变对拓扑极性涡旋结构的影响,有利于其在非易失性高密度铁电存储器件中的应用。 关键词 PbTiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> 超晶格;涡旋;应变;透射电子显微镜

中图分类号: TG115.21<sup>+</sup>5.3; TB383; 077 文献标识码: A **doi**: 10.3969/j.issn.1000-6281.2021.05.012

铁电薄膜由于具有优异的热释电性、压电性和 铁电性等物理特性,可以被集成到不同的电子器件 中发挥功能。最近几年,在铁电多层膜和铁电超晶 格中相继发现了多种复杂的拓扑极性结构相<sup>[1-7]</sup>, 这些拓扑极性结构相有望实现新一代非易失性高 密度铁电存储器的革新<sup>[8]</sup>,因此受到了广泛的关注 和探究。

应变工程是调控铁电薄膜中畴结构的一个重要变量。对于四方铁电体 PbTiO<sub>3</sub>(a = b = 0.3899 nm,c = 0.4153 nm)薄膜而言,其极化方向沿着 <001>晶带轴,如果 c 轴沿着面外方向排布即定义 为 c 畴,c 轴沿着面内方向排布定义为 a 畴。而 c 畴和 a 畴的形成依赖于应变的变化,属于铁弹畴,当拉 应变由小变大时,经典的 a/c 铁弹畴会转变成  $a_1/a_2$  铁弹畴<sup>[9]</sup>。直至 2015 年,在铁电多层膜中观测到了 广泛存在的周期性顺逆时针交替排列的全闭合阵 列结构<sup>[1-4]</sup>。全闭合结构是由一对极化分别竖直向上和向下的 c 畴与一对极化分别水平向左和向右的 a 畴组成。受到唐云龙等工作的启发,在 DyScO<sub>3</sub> 衬底上外延生长的 PbTiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>(PTO/STO) 超晶格 中陆续观测到了周期性存在的涡旋阵列<sup>[5-6]</sup>。起初 认为,涡旋的形成主要得益于 DyScO<sub>3</sub> 衬底施加的

拉伸应变。拉伸应变不同会造成薄膜的弹性能改 变,使得 PTO 薄膜中的极化处于一种平面内和平面 外分布共存的混合状态。随后通过相场研究,发现 随着拉应变增大,涡旋核心会由水平分布转变为一 上一下交替分布。得益于球差校正透射电子显微 技术的发展,现不仅可以精确地对涡旋核心进行成 像,同时也可利用 IDPC 技术对极性涡旋结构的极 化大小重新进行精确的测量和计算,计算得出的面 外极化值  $P_z$ ~ - 108.8~88.3 µC/cm<sup>-2</sup>,面内极化值  $P_s$ ~ - 50.8~62.3 µC/cm<sup>-2</sup>,面内极化值 *k*的研究仍处于探索中,特别是在压应变条件下生 长的 PTO/STO 超晶格中是否存在涡旋仍然有待探 索。除此之外,涡旋核心随着拉应变的变化有待于 深入,需要进一步实验验证。

本文针对以上问题,在(LaAlO<sub>3</sub>)<sub>0.29</sub>(SrTa<sub>1/2</sub> Al<sub>1/2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>0.71</sub>(LSAT)、DyScO<sub>3</sub>(DSO)、TbScO<sub>3</sub>(TSO)、 GdScO<sub>3</sub>(GSO)、SmScO<sub>3</sub>(SSO)和NdScO<sub>3</sub>(NSO)六种 衬底上利用脉冲激光沉积技术外延生长了SrRuO<sub>3</sub> (SRO)电极和(PTO<sub>12</sub>/STO<sub>12</sub>)<sub>10</sub>超晶格,利用衍射衬 度分析,选区电子衍射和高角环形暗场像探究了涡 旋是否在压应变条件下存在以及应变对极性涡旋 结构的影响。

收稿日期: 2021-05-08;修订日期: 2021-06-12

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(No. 51971223, No. 51671194, No. 51922100).

<sup>&</sup>lt;sup>#</sup> 共同第一作者: 宫风辉(1994-), 男(汉族), 山东人, 博士. E-mail: fhgong17s@ imr.ac.cn

陈雨亭(1995-),女(汉族),河北人,博士. E-mail: ytchen17s@ imr.ac.cn

<sup>\*</sup> 通讯作者: 马秀良(1964-), 男( 满族), 辽宁人, 研究员. E-mail: xlma@ imr.ac.cn

## 1 实验方法

实验上利用脉冲激光沉积(PLD)技术 (ComPexPRO 201FKrF 激光器, λ = 248 nm) 在六种 单晶衬底上外延生长了相同厚度的 SRO 电极和 (PTO<sub>12</sub>/STO<sub>12</sub>) 10超晶格。SRO 电极的生长温度为 700 ℃, 氧压 6.7 Pa, 激光频率 4 Hz; PTO/STO 超晶 格的生长温度为 700 ℃, 氧压 9.3 Pa, 激光频率 4 Hz; 靶材选用 Pb 过量 3% mol 的多晶烧结陶瓷, Pb 过量的原因是为了补偿其挥发性。STO 的靶材为单 晶靶材。生长前,先用丙酮清晰单晶基片表面,生 长时将基片加热到750℃并保温5min,清理衬底表 面的吸附物,然后将基片温度降低至700℃。沉积 之前将靶材表面进行 3 min 的激光烧灼,清理靶材 表面。生长结束后,先将超晶格在700℃下保温5  $\min$ ,氧压为3×10<sup>4</sup> Pa, 然后在此条件下降温,降温 速率为5℃/min,降温至200℃时,关闭电源,随炉 冷却至室温。

透射电子显微镜观察的截面样品采用传统的 制样方法,即:切割,对粘,研磨,抛光,粘环,凹坑和 离子减薄。在离子减薄之前,样品的厚度约为10~ 15 µm。离子减薄时,初始电压为6 kV,离子入射角 度为7°,以20 min 为一个时间步长。逐渐降低电压 至3 kV 和离子入射角度至4°,直至样品出现彩色 条纹。最后以0.5 kV 继续减薄5 min,目的是清理 样品减薄时产生的表面非晶层。制备样品过程中 采用的设备是 Gatan 公司生产的656 型凹坑仪和 PIPS 691或695离子减薄仪。高倍的扫描透射高角 环形暗场像(HAADF-STEM)的采集均采用 Titan Cubed 60-300 kV (FEI) 像差校正扫描透射电子显 微镜,采集时加速电压为 300 kV,会聚角为 21.4 mrad。所有 HAADF-STEM 图像均已进行了漂移校 正和过滤处理。高分辨 HAADF-STEM 像中原子柱 位置的确定采用二维高斯寻峰拟合方法,具体是由 本课题组自编的 Matlab 程序完成<sup>[12-13]</sup>。

## 2 实验结果与讨论

#### 2.1 晶格常数分析与应变计算

室温下, PTO 晶体为四方铁电体, 空间群为 P4mm。选用的商业 LSAT 衬底为立方结构, 五种商 业钪酸盐(AScO<sub>3</sub>) 衬底为正交结构。对于正交的钪 酸盐衬底, 通常按照伪立方分析与标定。正交的 (110) 方向对应于伪立方的(001) 方向。应变的计 算公式是:

$$\delta = \frac{a_s - a_f}{a_f} \times 100\%$$

沿着[001]方向的计算公式为:

$$a_s = \frac{c}{2}$$
 ,

沿着[110]方向的计算公式:

$$a_s = \frac{\sqrt{a^2 + b^2}}{2}$$

根据以上晶格失配的计算公式<sup>[14-15]</sup>,本文完成 了不同衬底与 PTO 晶格常数应变的计算,如表1所 示。从表1可以看出,LSAT 对超晶格施加的是压应 变,而五种钪酸盐衬底对超晶格施加的是拉伸应 变,并随着晶格失配的变大,拉伸应变趋于增强。

表1 衬底的晶格常数和超晶格与衬底的失配应变

Table 1	The lattice constants of	substrates and th	ne misfit strains ( $\delta$ )	) between these	substrates and superlattices
---------	--------------------------	-------------------	--------------------------------	-----------------	------------------------------

Substrates	a( Å)	<i>b</i> ( Å)	c( Å)	δ( 001)	$\delta(1\bar{1}0)$	$\delta($ ave $)$	
$( LaAlO_3)_{0.29} ( SrTa_{1/2}Al_{1/2}O_3)_{0.71}$	3.868	3.868	3.868	-0.8%			
DyScO <sub>3</sub>	5.440	5.717	7.903	1.36%	1.21%	1.28%	
$\mathrm{TbScO}_3$	5.466	5.731	7.917	1.54%	1.56%	1.55%	
$GdScO_3$	5.480	5.746	7.932	1.72%	1.82%	1.77%	
$SmScO_3$	5. 525	5.758	7.965	2.15%	2.36%	2.26%	
NdScO <sub>3</sub>	5.575	5.776	8.003	2.64%	2.94%	2.79%	
							_

#### 2.2 涡旋与应变的弱关联性分析

图 1 是(PTO<sub>12</sub>/STO<sub>12</sub>)<sub>10</sub>超晶格的不同 g 矢量 条件下的双束暗场像。图 1a,1b 是在压应变条件下 外延生长的超晶格薄膜的衍射衬度像,衍射矢量 g =002,两对白色箭头分别表示 LSAT/SRO 和 SRO/ (PTO/STO)界面,界面清晰平直。可以观测到在 PTO 薄膜内部存在周期性分布的畴结构,这与之前 观测到的涡旋畴的衍射衬度一致<sup>[5]</sup>。除此之外,从 衍射衬度图像中可以看到,涡旋畴的核心趋于水平 分布,与之前提出的涡旋核心变得一上一下交替分 布不同<sup>[16]</sup>。这表明在压应变下也存在周期性涡旋 阵列。图 1(c~l)为拉应变条件下的双束暗场像。 随着衬底与薄膜的晶格失配越来越大,拉应变越来 越大。其中图 1(c,e,g) 衍射衬度像的衍射矢量为**g**  =  $101_{\mu c}$ 或  $g = \overline{1}01_{\mu c}$ , 衍射衬度类似于 a/c 畴。在对 全闭合的研究过程中, 作者认识到全闭合是由 a/c畴构成的, 而全闭合和涡旋是具有共性的闭合结构 在不同厚度的多层膜和超晶格中分别表现出来的, 所以在通过  $g = 101_{\mu c}$ 或  $g = \overline{1}01_{\mu c}$ 衍射矢量获取的衍 射衬度像中出现类似 a/c 畴的形貌特征是可以理解 的。与图 1c, 1e, 1g 分别对应的图 1d, 1f, 1h 是 g = $001_{\mu c}$ 矢量下的衍射衬度像, 从图中清晰地反映出具 有黑白衬度的周期性涡旋排列, 涡旋呈现圆柱状。 当应变进一步加大, 生长在 SSO 和 NSO 衬底上超晶 格的衍衬像如图 1(i~1) 所示, 其中图 1(i,k) 的衍射 矢量沿着面内  $g = 100_{\mu c}$ 方向, 图 1(j,1) 的衍射矢量 沿着面外 g = 001<sub>pc</sub>方向。图 1(i,k)的衍衬像显示出 具有波浪的特征,类似于全闭合的衍射衬度像,实 际上这对应于两个具有面外极化的类 c 畴,即在涡 旋中沿着面外方向分布的极化区域。图 1(j,l)的衍 衬像在 PTO 层中同样清晰显示出具有黑白相间分 布的管状涡旋特征。通过衍衬分析表明,在压应变 下生长的超晶格中,依然存在周期性涡旋结构。随 着拉伸应变逐渐增大,涡旋的核心等结构没有明显 的变化。这进一步说明衬底施加的拉应变或者压 应变对涡旋的形成具有弱相关性<sup>[16-17]</sup>。此外,根据 衍射衬度像,作者注意到在较小的压应变下会产生 贯穿位错等缺陷,但在较大的拉应变条件下贯穿位



图 1 LSAT(001), DSO(110), TSO(110), GSO(110), SSO(110), 和 NSO(110), 衬底上 SRO/(PTO<sub>12</sub>/STO<sub>12</sub>), 薄膜的衍射衬度像。a-4. 不同 g 矢量条件下超晶格的衍衬像。Bar=50 nm

Fig.1 The SRO/(  $PTO_{12}/STO_{12}$ )  $_{10}$  superlattices grown on LSAT( 001) , DSO( 110)  $_{0}$  , TSO( 110)  $_{0}$  , GSO( 110)  $_{0}$  , SSO( 110)  $_{0}$  and NSO( 110)  $_{0}$  substrates. a-l. The diffraction contrast images under the condition of different g vector.

错密度依然较小。由于 PTO 为四方结构,当拉应变 逐渐增大时, c 轴可以位于面内和衬底的晶格进行 匹配从而释放应变。通常, PTO 薄膜中先通过形成 畴(a/c和a<sub>1</sub>/a<sub>2</sub>)释放应变,当应变不足以通过畴释 放时,才会产生贯穿位错等缺陷。但在压应变条件 下, c 轴只能位于面外,通常只存在单一 c 畴,所以较 小的压应变条件下就会产生大量贯穿位错等缺陷, 但这并不影响受 STO 层夹持的 PTO 薄膜中极性涡 旋的存在。

为了进一步证实涡旋畴的存在和确定涡旋的 周期性,作者完成了选区电子衍射实验。图 2(a~f) 是对应于图 1 六个应变条件下生长的(PTO<sub>12</sub>/ STO<sub>12</sub>)<sub>10</sub>超晶格的选区电子衍射谱。选区电子衍射 选择的区域包括少量衬底及大部分超晶格部分。 选区电子衍射谱的右上角标记的是衬底的名称。 图 2a 是典型立方结构的[010]底及大部分超晶格 部分。选区电子衍射谱的右上角标记是衬底的名称。 图 2a 是典型立方结构的[010]晶带轴的电 子衍射谱。标记为(103)和(402)的衍射斑点局部 放大图位于图 2a 的左下角和右下角。从放大的衍 射斑点中,可以清晰地观察到沿着面外方向分布的 布拉格衍射斑点,这反映超晶格面外具有周期性。 布拉格衍射斑点以外为卫星衍射斑点,卫星衍射斑 点表明在 PTO 薄膜中存在周期性畴结构,其对应于 衍射衬度像中观察到的涡旋畴结构。图 2(b~f) 是 典型的正交钪酸盐结构的电子衍射谱,作者以伪立 方对此标记。伪立方标记的原因是更容易阐述和 分析超晶格薄膜的信息。随后,通过电子衍射谱分 析拉应变条件下涡旋畴结构的变化。图 2b 中白色 实线框内的衍射斑点被标记为(102) m和(301) m, 对应的局部细节放大图位于图 2b 的左下角和右下 角。同理,图 2(c~f) 中也给出局域衍射点的劈裂分 布。可以看出图 2(b~f) 中所有局部放大的衍射斑 点都清晰地显示出沿着面外方向出现的周期性布 拉格衍射斑点和卫星衍射斑点。布拉格衍射斑点 表明超晶格沿着面外方向周期性堆垛,卫星斑点对 应于存在的周期性涡旋结构。本文对所有的电子 衍射谱中布拉格衍射斑点与卫星衍射斑点之间的 距离进行了测量和分析,卫星斑点与布拉格斑点之 间距离的倒数对应于涡旋的周期,发现不同应变下 涡旋的周期都为9 nm 左右,这表明涡旋的周期与应 变具有弱相关性。根据 Kittel 定律, 畴的周期主要



图 2 LSAT(001), DSO(110), TSO(110), GSO(110), SSO(110), 和 NSO(110), 衬底上 SRO/(PTO<sub>12</sub>/STO<sub>12</sub>), 超晶格的选区电子衍射图。电子衍射选择区域包括少量的衬底及大部分超晶格。

Fig.2 The selected area electron diffraction (SAED) patterns for SRO/( $PTO_{12}/STO_{12}$ ) <sub>10</sub> superlattices grown on LSAT(001) , DSO(110) <sub>0</sub> , TSO(110) <sub>0</sub> , GSO(110) <sub>0</sub> , SSO(110) <sub>0</sub> and NSO(110) <sub>0</sub> substrates , respectively. SAED pattern taken from the area including a small amount of substrate and a large amount of superlattice.

与薄膜厚度相关。在唐云龙等对全闭合的研究中, 认为 Kittel 定律同样也适用于多层膜或超晶格体 系<sup>[1]</sup>。由于本文生长的超晶格厚度均为12个单胞, 所以超晶格中极性涡旋的周期都是一致的。虽然 确定了涡旋的周期,但涡旋的细节不清晰,包括极 化分布、离子位移大小和晶格转角等。

为了确定涡旋随着拉应变变化的细节情况,作 者利用球差校正透射电子显微镜获取了原子尺度 的 HAADF-STEM 像。图 3a,3e,3i,3m,3q 分别为生 长在五种钪酸盐衬底上的(PTO<sub>12</sub>/STO<sub>12</sub>)<sub>10</sub>超晶格 中的一个涡旋对的原子尺度 HADDF-STEM 图像。 图像的底部分别标记了钪酸盐衬底的类型。在图 3a 中,黄色实线圆表示铅原子,红色实线圆表示钛 原子,蓝色实线圆表示锶原子。这是因为在 HAADF-STEM 像中,原子柱的强度近似与原子序数 的平方(Z<sup>2</sup>)成正比。PTO 为四方结构,其铁电性产



图 3 DSO(110)<sub>0</sub>,TSO(110)<sub>0</sub>,GSO(110)<sub>0</sub>,SSO(110)<sub>0</sub>和 NSO(110)<sub>0</sub> 衬底上的 SRO/(PTO<sub>12</sub>/STO<sub>12</sub>)<sub>10</sub>超晶格中 涡旋随应变的极化分布情况和晶格特征分析。a,e,i,m,q. 原子分辨的 HAADF-STEM 图像; b,f,j,n,r. 提取的涡旋 的极化分布图; c,g,k,o,s. Ti<sup>2+</sup>沿着面外方向的位移; d,h,l,p,t. 晶格旋转角 *R*<sub>x</sub>。

Fig.3 Polarization distribution of vortex with strain and the analysis of lattice characteristics for SRO/( $PTO_{12}/STO_{12}$ )  $_{10}$  superlattice grown on LSAT(001) , DSO(110)  $_0$ , TSO(110)  $_0$ , GSO(110)  $_0$ , SSO(110)  $_0$  and NSO(110)  $_0$  substrates, respectively. a, e, i, m, q. High resolution HAADF-STEM images; b, f, j, n, r. The extracted polarization distribution of polar vortex; c, g, k, o, s. Ti<sup>2+</sup> displacement along the out-of-plane direction; d, h, l, p, t. Lattice rotation angle ( $R_x$ ).

生的原因是阴阳离子产生相对位移导致正负电荷 的中心不重合,从而形成电偶极子。红色箭头表示 Ti<sup>2+</sup>位移的方向,而自发极化的方向与Ti<sup>2+</sup>位移的方 向相反。与图 3a, 3e, 3i, 3m, 3q 相对应的极化映射 图是图 3b, 3f, 3j, 3n, 3r。所有的极化映射图都清晰 地表现出一对顺时针和逆时针方向的涡旋,而涡旋 核心位置随着拉应变的增大没有明显的波动,这表 明衬底对超晶格施加的拉伸应变与涡旋核心位置 并没有强烈的依赖关系。但大量的实验证明,在 PTO/STO 超晶格中存在应变波动,这可能被理解为 PTO 受到对称的 STO 层夹持, PTO 和 STO 之间存在 较小的晶格失配而导致<sup>[1-7,18-19]</sup>。图 3c,3g,3k,3o, 3s 为沿着面外方向 Ti<sup>2+</sup>的位移分布图,位移的正负 仅仅表示方向的不同。离子位移表明在涡旋的两 侧离子位移的大小基本上相等,而沿着面内方向的 晶格转角(Rx,涡旋的顺时针方向定义晶格转角为 正,逆时针方向定义为负)在3°左右,如图3d,3h, 31,3p,3t中所示。通过极化映射、离子位移以及晶 格转角分析可发现涡旋的核心随着应变的变化没 有明显的波动,并不会像文献中报道的涡旋核心随 着应变增大移动到靠近 PTO/STO 界面位置[16]。此 外,本文需要说明局部区域涡旋核心可能会波动, 对此合理的解释是管状的涡旋核心并没有严格的 按照直线分布。

最后,需要额外说明样品生长与衍射衬度像的 获取时间是在 2018 年,而电子衍射以及球差校正 HAADF-STEM 图像的获取时间是在 2021 年,经过 3 年左右的时间,制备的透射电子显微镜截面样品中 的涡旋依然能够保持完美的阵列存在,表明涡旋是 一种非常稳定的极性拓扑结构。

# 3 结论

利用脉冲激光沉积技术在压应变 LSAT 衬底 上、拉应变 DSO,TSO,GSO,SSO 和 NSO 衬底上生长 了 SRO 电极和(PTO<sub>12</sub>/STO<sub>12</sub>)<sub>10</sub>超晶格。通过衍衬 分析、选区电子衍射以及 HAADF-STEM 对超晶格中 的畴组态进行了分析,得到结论如下。

(1) 在压应变条件下,即在 LSAT 衬底上生长的
 SRO 电极和(PTO<sub>12</sub>/STO<sub>12</sub>)<sub>10</sub>超晶格中,在 PTO 层形成了周期性分布的涡旋畴。

(2) 在拉应变条件下,即在钪酸盐衬底上生长的 SRO 电极和(PTO<sub>12</sub>/STO<sub>12</sub>)<sub>10</sub> 超晶格中,在 PTO 层形成了周期性分布的涡旋畴,进一步分析表明涡旋的核心处以及涡旋的周期并没有随着应变的增

加而改变。

(3) 涡旋是一种非常稳定的拓扑极性结构。

因此,在涡旋的可控制备中,拉应变与压应变 并不会对涡旋的形貌以及微观结构产生显著的影 响。研究结果对基于涡旋的高密度信息存储器件 的研发提供借鉴,对极性拓扑结构的研究与认识具 有重要意义。

#### 参考文献:

- TANG Y L, ZHU Y L, MA X L, et al. Observation of a periodic array of flux-closure quadrants in strained ferroelectric PbTiO<sub>3</sub> films [J]. Science, 2015, 348 (6234): 547-551.
- [2] LIU Y, WANG Y J, ZHU Y L, et al. Large scale twodimensional flux-closure domain arrays in oxide multilayers and their controlled growth [J]. Nano Letters, 2017, 17 (12): 7258-7266.
- [3] LI S, WANG Y J, ZHU Y L, et al. Evolution of fluxclosure domain arrays in oxide multilayers with misfit strain [J]. Acta Materialia, 2019, 171: 176-183.
- [4] 陈雨亭,朱银莲,宫风辉,等.铁电全闭合畴结构的
   稳定性研究[J].电子显微学报,2020,39(6):635
   -641.
- [5] YADAV A K, NELSON C T, HSU S L, et al. Observation of polar vortices in oxide superlattices [J]. Nature, 2016, 530 (7589): 198-201.
- [6] ABID A Y, SUN Y W, HOU X, et al. Creating polar antivortex in PbTiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> superlattice [J]. Nature Communications, 2021, 12: 2054.
- [7] WANG Y J, FENG Y P, ZHU Y L, et al. Polar meron lattice in strained oxide ferroelectrics [J]. Nature Materials, 2020, 19: 881–886.
- [8] SCOTT J F, ARAUJO C A P D, Ferroelectric memories
   [J]. Science, 1989, 246 (4936): 1400-1405.
- [9] LEE K S, CHOI J H, LEE J Y, et al. Domain formation in epitaxial Pb(Zr, Ti) O<sub>3</sub> thin films [J]. Journal of Applied Physics, 2001, 90 (8): 4095-4102.
- [10] SUN Y W, ABID A Y, TAN C B, et al. Subunit celllevel measurement of polarization in an individual polar vortex [J]. Science Advance, 2019, 5: eaav4355.
- [11] DU K, ZHANG M, DAI C, et al. Manipulating topological transformations of polar structures through real-time observation of the dynamic polarization evolution [J]. Nature Communications, 2019, 10: 4864.
- [12] 冯燕朋,朱银莲,唐云龙,等. PbTiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>(001)
   复杂畴组态和缺陷的研究 [J].电子显微学报,2018,37(6):556-562.

- [13] 冯燕朋,唐云龙,朱银莲,等.(110)取向 BiFeO3薄
   膜界面诱导结构特性研究 [J].电子显微学报, 2020,39(6):635-641.
- [14] VELICKOV B, KAHLENBERG V, BERTRAM R et al. Crystal chemistry of GdScO<sub>3</sub>, DyScO<sub>3</sub>, SmScO<sub>3</sub> and NdScO<sub>3</sub> [J]. Zeitschrift für Kristallographie, 2007, 222 (9): 466-473.
- [15] UECKER R, VELICKOV B, KLIMM D, et al. Properties of rare-earth scandate single crystals (Re=Nd – Dy) [J]. Journal of Crystal Growth, 2008, 310 (10): 2649–2658.
- [16] LI Q, NELSON C T, HSU S L, et al. Quantification of flexoelectricity in PbTiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> superlattice polar vortices using machine learning and phase-field modeling

[J]. Nature Communications, 2017, 8: 1468.

- [17] SCHLOM D G, CHEN L Q, EOM C B, et al. Strain tuning of ferroelectric thin films [J]. Annual Review of Materials Research, 2007, 37 (1): 589-626.
- [18] LI X M, TAN C B, LIU C, et al. Atomic-scale observations of electrical and mechanical manipulation of topological polar flux closure [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2020, 117 (32): 202007248.
- [19] CHEN P, ZHONG X L, ZORN J A, et al. Atomic imaging of mechanically induced topological transition of ferroelectric vortices [J]. Nature Communications, 2020, 11: 1840.

# Weak correlation between topological vortices and strain

GONG Feng-hui<sup>1,2#</sup>, CHEN Yu-ting<sup>1,2#</sup>, ZHU Yin-lian<sup>3</sup>, TANG Yun-long<sup>1</sup>, SHI Tong-tong<sup>1,2</sup>, MA Xiu-liang<sup>1,4\*</sup>
(1.Shenyang National Laboratory for Materials Science, Institute of Metal Research, Chinese Academy of Sciences, Shenyang Liaoning 110016; 2.School of Materials Science and Engineering, University of Science and Technology of China, Shenyang Liaoning 110016; 3.Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan Guangdong 523808;
4.State Key Lab of Advanced Processing and Recycling on Non-ferrous Metals, Lanzhou University of Technology, Lanzhou Gansu 730050, China)

**Abstract** Strain engineering, as an important means of regulating ferroelastic domains, has always received extensive attention, but the influence of strain on the topological vortex structure has been unclear. In this paper, the  $PbTiO_3/SrTiO_3$  superlattices are subjected to different compression and tensile strain modulations, and the effect of strain on the polar vortex was systematically studied by aberration-correction transmission electron microscopy. Diffraction contrast analysis and selected area electron diffraction show that vortex arrays also exist under the conditions of compressive strain, which overturns the original understanding that tensile strain promotes the formation of vortices. In addition, the core and the period of the vortex do not change significantly with the increase of strain, and the vortex has strong stability. The experimental results show that there is a weak correlation between strain and topological vortex structure. This study clarifies the effect of strain on the topological vortex structure, which is beneficial to its application in nonvolatile high-density ferroelectric memory.

Keywords PbTiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> superlattice; vortex; strain; transmission electron microscope

- # Co-first author
- \* Corresponding author