

高密度极性拓扑结构与硅基半导体的集成

韩露^{1,2} 吴迪^{1,2,†} 聂越峰^{1,2,††}

(1 南京大学现代工程与应用科学学院 江苏省功能材料设计原理与应用技术重点实验室
固体微结构物理国家重点实验室 南京 210093)

(2 南京大学 人工微结构科学与技术协同创新中心 南京 210093)

2022-03-31 收到

† email: diwu@nju.edu.cn

†† email: ynie@nju.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20220507

拓扑学作为数学中的一个重要分支, 主要研究拓扑空间在拓扑变换下的不变性质和不变量。近年来, 拓扑学与材料科学的关联日益紧密, 拓扑的概念逐渐被引入研究凝聚态物理中的奇异态, 包括实空间中具有新颖极化/自旋构型的拓扑结构以及倒易空间中的拓扑现象等^[1-3]。铁电薄膜由于场致翻转的非易失性自发极化, 在信息存储/处理、传感、谐振和能源等先进纳米功能器件中具有重要应用价值, 因此探索其中的新颖拓扑结构及其物性成为当前凝聚态物理研究的重点之一^[4]。

与铁磁材料相比, 铁电材料中极性拓扑结构的研究工作起步较晚, 一个重要的原因是铁电块体材料中较强的晶格-极化耦合作用(lattice-polarization coupling)使得极化旋转需要很高的能量, 通常难以发生。直到2004年, I. Naumov等^[5]采用第一性原理计算, 首次预言铁电纳米点或纳米线中存在极性涡旋结构, 并从理论上推测基于这种拓扑结构可以实现面密度超过60 Tbit/inch²的超高密度存储器; 而后, 人们又在诸如铁电外延超薄膜、纳米颗粒等体系中预言了极性拓扑畴的存在^[6, 7]。但是在实验研究方面, 由于材料制备和表征技术的限制, 始终未取得长足的进展。2008年, A. Gruverman等^[8]借助压电力显微技术(PFM)最早在实验上报道了铁电涡旋畴; 2011年, C. Jia等^[9]借助球差校正扫描透射电镜获得了原子尺度极

化结构的直接证据。此后, 陆续有研究工作表明, 在尺寸效应、界面耦合及其相互作用、外延应变等作用下, 铁电材料中会出现多种自发的非平庸极性拓扑结构, 包括流量闭合型、涡旋、反涡旋、极性斯格明子和半子等^[10-15], 并表现出奇异的物理特性(如导电性增强、负电容等)。如今, 与铁电相关联的非平庸拓扑结构已经成为下一代高密度存储器件重要的研究方向之一, 这为材料科学以及凝聚态物理学的相关研究打开了一扇崭新的大门。

尽管具有潜在的应用前景, 但由于钙钛矿氧化物体系与当前成熟的互补金属氧化物半导体工艺缺乏兼容性, 仍然难以将上述极性拓扑结构应用于新一代电子器件中。此外, 极性拓扑畴的形成是体系中弹性能、静电能和梯度能之间在微小差别内相互竞争平衡的结果, 因此需要特殊的材料结构设计, 主要在氧化物衬底上的外延薄膜异质结中才能观测到^[10-14], 能否实现其与硅

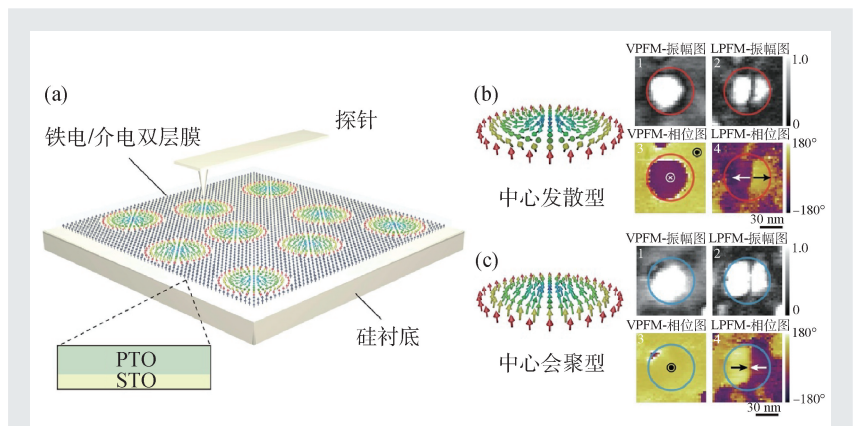


图1 PTO₂₀/STO₁₀双层膜中高密度铁电纳米畴的实现 (a) 自支撑双层膜中铁电纳米畴示意图; (b), (c) 中心发散型和中心会聚型纳米畴的示意图, 以及它们的VPFM振幅、相位图和LPFM振幅、相位图^[21]

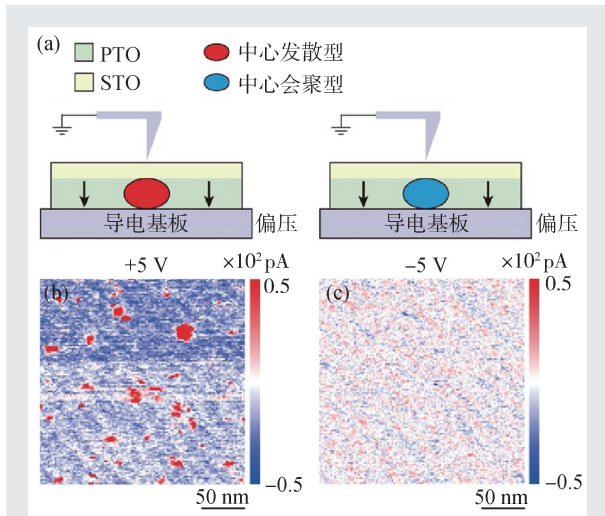


图2 自支撑氧化物双层结构中极性拓扑纳米畴的可逆阻态调控 (a)CAFM测试拓扑纳米畴电阻行为的示意图;施加+5 V (b)和-5 V (c)偏置电压可以在低阻态中心发散型纳米畴和高阻态中心会聚型纳米畴之间的可逆切换^[21]

基片的集成以推动其器件应用仍是一个重要的科学问题。

为解决钙钛矿氧化物与半导体材料的兼容性问题,人们尝试将过渡金属氧化物制备成高质量自支撑晶体膜,并将这些独立的功能单元进行组合及转移到半导体基片上以实现功能的整合^[16, 17]。该方面的技术在2016年得到突破,斯坦福大学的H. Hwang教授课题组^[18]利用脉冲激光沉积的技术在水溶性材料中间层 $\text{Sr}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ 上生长钙钛矿薄膜,通过溶解过渡层的方式获得了高质量的自支撑钙钛矿氧化物薄膜。借助该方法,人们成功制备出低维自支撑铁电薄膜并在其中发现了不同于外延薄膜的新颖物性,如四方性增强、超弹性等^[19, 20]。在最近的工作中,我们将自支撑 $\text{PbTiO}_3/\text{SrTiO}_3$ (PTO/STO)铁电/介电薄膜转移至硅基底上以进行集成,成功获得了高密度的铁电拓扑纳米畴(约200 Gbit/inch²),并实现了阻态在外电场下的可逆调控^[21]。高密度、可擦写铁电拓扑纳米畴与硅基片的成功集成展示了新奇氧化物极性拓扑结构在新型高密度非易失性存储器中的广阔应用前景。

实验上,我们首先利用氧化物分子束外延技术在 $\text{SrTiO}_3(001)$ 单晶衬底上生长了 $(\text{PbTiO}_3)_m/$

$(\text{SrTiO}_3)_n/\text{Sr}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ (m, n 是单胞数)异质结。之后,通过溶解水溶性牺牲层的方法,获得了一系列高质量自支撑的钙钛矿双层薄膜并将其转移到硅衬底上。借助压电力显微技术,我们在 $(\text{PbTiO}_3)_{20}/(\text{SrTiO}_3)_{10}$ 的自支撑薄膜中观测到了高密度的拓扑纳米畴结构(图1)。注意到,在自支撑双层膜中存在两种类型的圆形纳米畴结构,分别由红色和蓝色圆圈突出显示,它们的放大图如图1(b)和(c)右侧图所示,并且这些畴结构与样品形貌没有明显的相关性。以红色圆圈中的纳米畴结构为例,纵向PFM(vertical PFM, VPFM)模式的相位图显示,纳米畴中心的面外极化分量与周围背景区域的存在 180° 相位反转,而横向PFM(lateral PFM, LPFM)模式的相位图则显示“半紫半黄”的对比度,同时LPFM振幅图中显示圆形明亮对比度区域被暗线分割,说明垂直于探针悬臂梁方向的面内极化分量发生了相位反转。由于LPFM技术依靠悬臂梁沿着垂直于自身方向的扭转来探测信号,因此只有投影到垂直于悬臂梁的面内极化分量才能被区分。通过将样品顺时针旋转一组给定的角度,LPFM振幅图中的暗线随着悬臂梁与样品相对夹角的变化而连续变化,LPFM相位图始终显示左右两侧 180° 的相位差,这意味着面内极化具有关于纳米畴中心的旋转对称性。同时,借助矢量PFM技术,实验结果证明红色圆圈中的纳米畴具有中心发散的畴结构。结合VPFM和LPFM的信息,红圈内纳米畴的极化分布如图1(b)左图所示,为奈尔型极性类斯格明子。与红圈内纳米畴不同,蓝色圆圈内的纳米畴没有显示面外极化分量的反转,且面内极化呈现中心会聚的特性,这些蓝色圆圈内的(中心会聚型)纳米畴与红色圆圈内(中心发散型)纳米畴密切相关,但表现出不同的电阻性质。此外,实验还发现这两种类型的拓扑纳米畴可以在外加电场下相互转换。借助四维扫描透射电子显微技术,进一步确定了样品中中心发散/会聚型的极化结构。同时,我们通过有效哈密顿量方法模拟证实了在PTO/STO双层膜中可以稳定存在上述两种复杂的极性拓扑结构。

为了探索这些拓扑结构在阻抗存储器中的潜在应用,我们借助导电原子力显微镜(CAFM)研究

了这些拓扑纳米畴的电阻行为。中心会聚型极性拓扑畴的中心电流大小类似于周围的背景区域,这使得这种类型的拓扑畴与背景无法区分。然而,对于中心发散型的极性拓扑结构,其中心显示出高两个数量级的增强电流。此外,通过施加外电场使纳米畴在两种类型的极化拓扑结构之间切换,可以可逆地切换不同的电阻状态。如图2(a)左图所示,通过尖端施加的+5 V偏压在双层膜上写入中心发散纳米畴后,在电流图中观察到具有高电流值的高密度圆形纳米点(图2(b));而通过-5 V偏压将同一区域的中心发散型翻转为中心会聚型纳米畴后,圆形高电流值的纳米点消失(图2(c))。由于存在绝缘SrTiO₃层(约4 nm),我们需要相对较高的电压(+5 V/-5 V偏置电压)来隧穿能垒,以便在测量电流图时获得低噪声数据,这将直接翻转拓扑纳米畴并破坏原始信息。尽管如此,两种类型的拓扑纳米畴电流图表现出不同的电阻状态。该现象可能的机理解释如下,铁电PTO和顺电STO的双层膜被夹在底电极和导电尖端之间并形成一结,此时,将极性拓扑畴在绝缘态和导电态之间进行状态切换可以实现对整体结构电阻的调节。与铁电畴壁^[22, 23]中观察到的高导电通道类似,由于存在较大的极化发散,在中心发散型拓扑结构的中心附近可以产生较大的电导率。相比之下,由于中心会聚型纳米畴中没有面外极化的反转,其中心区域附近的极化发散度较低,同时电偶极子不需要完全翻转至面内方向以衔接中心和周围背景区域的具有反平行方向的极化。因此,两种不同类型的纳米畴导致结存在不同的势垒宽度和能带,从而产生不同的电阻状

态。目前,可以通过PFM和扫描透射电镜技术来实现拓扑畴的非易失性读取。为了获得可靠的电阻态无损读取,通过在保持极性拓扑结构稳定存在的前提下,降低STO层的厚度来降低隧穿电压是一种可能的解决方案;或借助其他可以在不施加高外部直流电压的情况下测量电阻状态的技术,如扫描微波阻抗显微镜可能也会有所帮助。综上,不同类型拓扑纳米畴及其电阻状态之间的可逆切换为设计基于拓扑极性纳米畴的电阻存储器件提供了新途径。

这一工作首次实现了高密度极性拓扑结构与硅基片的异质集成,展现了氧化物与传统半导体在器件集成方面的广阔前景。该研究成果近期于*Nature*杂志上发表。高密度、可擦写极性拓扑结构能够被成功集成在硅基片上,并且经过光刻流程后仍能稳定存在,初步展现了将丰富的氧化物极性拓扑结构与传统半导体工艺相结合以开发新型高密度、低能耗、高性能电子器件的可能性。与此同时,需要注意的是,这离实际应用还有遥远的距离,仍有一系列重要的科学问题需要解决。首先,如何实现晶圆尺寸的大面积、高质量自支撑氧化物薄膜的生长和转移还存在巨大的挑战;其次,目前的读写电压还相对很高,需要进一步优化结构以降低读写电压才能达到商用存储器件的低能耗、非易失性读写的要求;再次,极性拓扑畴结构能否制备成阵列结构以及在顶、底电极间是否稳定存在还需要系统探索。上述难题的解决以及将更多新奇的极性拓扑结构与半导体基片进行集成的尝试都将推动氧化物极性拓扑结构往新一代电子器件应用方面更进一步。

参考文献

- [1] Mermin N D. *Rev. Mod. Phys.*, 1979, 51: 591
- [2] Haldane F D M. *Rev. Mod. Phys.*, 2017, 89: 040502
- [3] Kosterlitz J M. *Rev. Mod. Phys.*, 2017, 89: 040501
- [4] Spaldin N A. *Physics of Ferroelectrics*. Springer, 2007
- [5] Naumov I I, Bellaiche L, Fu H. *Nature*, 2004, 432: 737
- [6] Kornev I, Fu H, Bellaiche L. *Phys. Rev. Lett.*, 2004, 93: 196104
- [7] Stachiotti M G, Sepiarsky M. *Phys. Rev. Lett.*, 2011, 106: 137601
- [8] Gruverman A *et al.* *J. Phys.: Condens. Matter*, 2008, 20: 342201
- [9] Jia C L, Urban K W, Alexe M *et al.* *Science*, 2011, 331: 1420
- [10] Tang Y L *et al.* *Science*, 2015, 348: 547
- [11] Yadav A K *et al.* *Nature*, 2016, 530: 198
- [12] Das S *et al.* *Nature*, 2019, 568: 368
- [13] Wang Y J *et al.* *Nat. Mater.*, 2020, 19: 881
- [14] Abid A Y *et al.* *Nat. Commun.*, 2021, 12: 2054
- [15] Guo M *et al.* *Science*, 2021, 371: 1050
- [16] Bakaul S R *et al.* *Nat. Commun.*, 2016, 7: 10547
- [17] Paskiewicz D M, Sichel-Tissot R, Karapetrova E *et al.* *Nano Lett.*, 2016, 16: 534
- [18] Lu D *et al.* *Nat. Mater.*, 2016, 15: 1255
- [19] Ji D *et al.* *Nature*, 2019, 570: 87
- [20] Dong G *et al.* *Science*, 2019, 366: 475
- [21] Han L *et al.* *Nature*, 2022, 603: 63
- [22] Ma J *et al.* *Nat. Nanotechnol.*, 2018, 13: 947
- [23] Yang W *et al.* *Nat. Commun.*, 2021, 12: 1306

以经典的124 模拟性能... ... 提供双相锁定

推介SR2124 — 终极模拟锁相放大器

- 具124性能的双相锁定
- 低噪声，全模拟设计
- 带直流偏置的正弦波输出源
- 0.2 Hz至200kHz范围
- 2.8 nV/ $\sqrt{\text{Hz}}$ 输入噪声

我们听到了你的声音。 多年来研究人员一直恳求我们开发一个类似1960年代PAR124的全模拟仪器。于是我们推出了SR124单相模拟锁定。然后你们又问，“双相版如何？”现在我们很高兴地宣布SR2124双相模拟锁定的到来。

在低温传输测量中，双相至关重要。在这种测量中，相移可能意味着欧姆接触已开始出现问题。而且我们的CPU-停止架构可确保无任何导致样品自热的数字噪声。为便于差分电导测量，我们在正弦输出中添加了直流偏置。我们的低噪声输入确保您快速获得答案。

感谢您的反馈。



SR2124 双相模拟锁定 ... \$8745

SR124 单相模拟锁定 ... \$7645



Stanford Research Systems

1290-D Reamwood Ave. Sunnyvale, CA 94089 · www.thinkSRS.com

Phone (408) 744-9040 · Fax (408) 744-9049 · info@thinkSRS.com

先锋科技股份有限公司
电话: 86-10-6263-4840
Email: sales@teo.com.cn

欧陆科技有限公司
电话: 86-10-6800-8213/16/17
Email: euro-tech.bj@euro-tech.com

北京东方科泰科技发展有限公司
电话: 86-10-6497-1708
Email: sales@bost-ltd.com