重新审视共同 横向压电响应力显微镜的对比机制

Jaegyu Kim,[1,*] Seongwoo Cho,[1] Jiwon Yeom,[1] Seongmun Eom,[1] 以及 Seungbum Hong[1,2,*]

[1]韩国科学技术院材料科学与工程系，大田 *34141*，大韩民国

[2]*KAIST* 纳米世纪研究所，韩国科学技术院，大田 *34141*，韩国

压电响应力显微镜（PFM）已广泛用于纳米尺度压电性质和铁电畴分析。PFM具有简单、无损的特点，因此十分有用；然而，非压电效应可能会干扰PFM测量，影响PFM信号，或使非铁电材料呈现类铁电行为。许多研究探讨了相关技术问题，但主要聚焦于垂直压电力显微镜。本文研究了横向压电力显微镜正向扫描与反向扫描信号之间的显著差异；这种差异与扫描角度及悬臂梁横向倾斜差异成正比。我们基于内禀和外禀成分分析了PFM信号的差异，包括面外压电响应、静电力及其他因素。本研究将有助于实现准确的PFM测量，从而呈现铁电材料面内极化的分布。

*kimjaegyu@kaist.ac.kr, seungbum@kaist.ac.kr

关键词：铁元素电性、极化、压电响应力显微镜、悬臂梁横向扭转、静电力

I. 引言

压电响应力显微镜（PFM）是扫描探针显微镜（SPM）的一种模式，广泛用于对压电材料和铁电材料进行无损纳米尺度表征。对于压电张量非零的材料，可通过PFM中悬臂梁-探针-样品系统的振动位移（机电响应）分析其压电性质和铁电畴 [1]。这种位移由外加交流偏压驱动的逆压电效应（压电响应）引起。基于锁相技术，垂直压电响应力显微镜（VPFM）[和横向压电响应力显微镜（LPFM）] 利用悬臂梁的纵向（扭转）振动，显示与有效压电系数 d_{33}^{eff} (d_{15}^{eff})相关的面外（OP）[和面内（IP）] 畴。此外，基于在悬臂梁长轴与样品晶轴之间若干特定角度下获得的LPFM结果 [2,3]，可通过角分辨压电响应力显微镜（AR-PFM）重建二维面内压电响应图。尽管PFM可通过悬臂梁弯曲便捷地呈现极化分布，但除探针半径造成的分辨率限制外，它还存在与悬臂梁动力学相关的典型技术问题 [4], 。

PFM信号可能伴随着非压电效应，例如探针与样品之间的局域静电效应 [5] 以及悬臂梁与样品之间的非局域静电效应 [6], 、电化学应变（维加德应变）[7], 、电致伸缩 [8], 、挠曲电效应 [9], 和焦耳热 [10]。在极端情况下，非压电效应会导致压电响应力显微镜振幅增强 [10] ，或使非铁电材料表现出类铁电行为 [11]。PFM对悬臂梁-探针-样品系统的依赖性还会引入其他非压电效应，包括悬臂梁屈曲 [12,13], 、探针滑动 [14], 、表面吸附物 [15], 、形貌特征 [16], 、悬臂梁形状因子 [17], 以及阻尼 [18,19]。不仅非压电效应会造成影响，面内（面外）压电响应也会使垂直压电力显微镜（横向压电力显微镜）信号发生畸变 [12,13,20]。许多研究探讨了上述串扰问题 [21-23] ，或提出了有效利用这些效应的方法 [13]。然而，尚无研究全面探讨横向压电力显微镜信号中面外与面内压电响应之间的耦合。

本研究探讨铁电聚合物和氧化物薄膜正向扫描（T）与反向扫描（R）的 PFM 信号之间差异的成因。我们展示了 VPFM 和 LPFM 信号的差异，以及悬臂梁横向倾斜（横向摩擦）随扫描角度的变化。LPFM 信号的差异与横向倾斜差异成正比，而横向倾斜差异又与扫描角度成正比；相比之下，VPFM 信号的差异与横向倾斜差异及扫描角度均无显著相关性。此外，我们从多种因素分析这些差异，包括面外极化状态、非局域静电力、横向摩擦、PFM 模式和样品定位。基于受控实验，我们证明，与微弱的非局域静电力及其他因素相比，LPFM 偏差显著取决于面外压电响应。然而，在某些极端情况下，非局域静电力可能比面外压电响应和横向倾斜的影响更为显著。本研究有助于更准确地表征铁电材料的面内极化分布。

II. 实验步骤

采用原子力显微镜（Cypher ES，Asylum Research）和两种 Pt/Ir 涂层探针（EFM 和 CONTPt，Nanosensors）对铁电薄膜进行 SPM 成像；这两种探针的弹簧常数分别约为 2.8 N/m 和 0.2 N/m。扫描速率为 0.8 Hz 和 1 Hz，加载力为 50 nN 至 150 nN。铁电薄膜包括：沉积在 Cr/SiO_2沉积 Si 基底[24], 上、底电极为 Au 的聚偏氟乙烯-三氟乙烯共聚物 [P(VDF-TrFE)] 薄膜（厚 40 nm）；外延生长于沉积有 $SrRuO_3$ （75 nm）的 $SrTiO_3$ (001) 基底[25], 上的 $BiFeO_3$ （BFO）薄膜（厚 35 nm）；以及通过溶胶-凝胶法制备、沉积在 Pt（150 nm）/Ti（10 nm）/SiO_2沉积 Si 基底上的多晶 $Pb(Zr_{0.2}Ti_{0.8})O_3$ 和 $Pb(Zr_{0.52}Ti_{0.48})O_3$ （PZT）薄膜（厚 50 nm 和 100 nm）（Quintess Co. Ltd.，韩国）。进行 PFM 成像时，将交流调制电压施加于探针，同时将底电极接地；P(VDF-TrFE) 和 BFO 薄膜所施加的电压为 1 V，PZT 薄膜为 0.5 V。PFM 成像包括：在接触共振频率附近进行的矢量 PFM（VPFM 约 380 kHz，LPFM 约 700 kHz）、在接触频率下进行的离共振矢量 PFM（VPFM 为 17 kHz，LPFM 为 37 kHz），以及采用双交流共振跟踪的 LPFM（DART-LPFM），其跟踪的接触共振频率约为 687 kHz。横向力显微镜（LFM）与 PFM 成像同步进行。

III. 正向与反向扫描中横向压电响应力显微镜信号的显著差异

A. 扫描角度依赖性

为研究 PFM 信号对扫描方向的依赖性，我们首先使用接地探针，通过扫描 4 μm × 4 μm 的区域，在聚偏氟乙烯-三氟乙烯共聚物薄膜中制备畴结构，同时向底电极施加直流偏置电压阶跃：-10 V、-8 V、-6 V、-4 V、+4 V、+6 V、+8 V，以及+10 V（V_{BE}），扫描区域宽度为 4 μm、长度为 500 nm。 图 1(a) 和 1(b) 展示了电极化畴结构的形貌、VPFM、LPFM 和悬臂梁横向扭转图像；这些图像是在扫描角度（θ）分别为 0° 和 90° 时获取的，同时使用 PFM 测量形貌和横向扭转。上排图像和下排图像分别通过正向扫描和反向扫描获得。

P(VDF-TrFE)薄膜具有层状结构，这是P(VDF-TrFE)铁电相的特征，且在电极化后未出现任何形貌损伤。由于P(VDF-TrFE)具有负d_{33}^{eff} and d_{15}^{eff} 系数[26-28], , 这些系数会影响压电力显微镜中的面外和面内压电响应，因此，相对于悬臂长轴[24,29,30], 向上畴的VPFM相位信号为0°，向下畴为180°；面内左向畴的LPFM相位信号为0°，向右指向的面内畴为180°。面外极化在低于-8 V时向下翻转，而在高于+6 V时向上翻转。值得注意的是，尽管初始状态为向下极化，但向上翻转比向下翻转更容易。向上和向下极化畴内部的VPFM和LPFM振幅信号均较大，但在向上畴的+6 V区域内相对较小，这可能是由于未饱和翻转或两者之间的死层所致。

P(VDF-TrEF) 薄膜与底电极 [31]。较大的 VPFM 和 LPFM 振幅信号表明，面内极化可能源于 (110) 极化，该极化同时包含面外和面内极化分量 [32]。

更有意思的是，只有在 90° 扫描角度下，横向压电力显微镜相位信号在正向扫描和反向扫描之间呈现出显著相反的趋势；而无论扫描角度如何，VPFM 振幅和相位信号在正向扫描与反向扫描中的数值都相近。例如，在90° 扫描角度的正向扫描中，与0°扫描角度的情况相比，未极化区域和下极化畴的横向压电力显微镜相位信号较低（相位呈较暗的紫色），而上极化畴的横向压电力显微镜相位信号较高（相位呈较亮的黄色）。然而，在90° 扫描角度的反向扫描中，趋势则相反。需要指出的是，我们将正向扫描与反向扫描之间的这种差异定义为“差异”，其计算方法是用正向扫描图像减去反向扫描图像（T-R）[33]。

差异图[图1(c)和图1(d)] 更清楚地展示了正向扫描与反向扫描之间的差异。形貌差异的数值可以忽略不计，这表明压电力显微镜扫描期间的悬臂漂移并非造成较大横向压电力显微镜差异的主要因素。VPFM 和 LPFM 振幅差异主要出现在极化畴内部，而 VPFM 和 LPFM 相位差异主要出现在畴边界处；在90° 扫描角度下，横向压电力显微镜差异显著大于VPFM差异。通常，VPFM 信号更容易受到悬臂梁屈曲的影响，而悬臂梁屈曲在0°扫描角度下最大；相比之下，悬臂梁横向扭转在90° 扫描角度下最大[13]。相反，LPFM信号似乎更容易受到悬臂梁横向扭转的影响。

需要指出的是，LPFM 振幅差异同时取决于面外极化和面内极化的极性。在面内左向畴中，下极化畴的 LPFM 振幅差异为正，而上极化畴中为负；在右向面内畴中，趋势则相反。LPFM 相位差异主要取决于面外极化的极性。在下极化畴中，面内畴边界处的 LPFM 相位差异主要为负；而在上极化畴中，面内畴边界处的 LPFM 相位差异主要为正。

横向扭转差异代表 0° 扫描角度下横向剪切显微术（TSM）的信号，以及 90° 扫描角度下横向力显微镜（LFM）的信号；横向力显微镜也称为摩擦力显微镜。本文采用横向扭转差异，而非 TSM 和 LFM，以便于比较并统一术语。在两个扫描角度下，横向扭转差异仅呈现聚偏氟乙烯-三氟乙烯共聚物层状结构的形貌特征。90° 扫描角度下的横向扭转差异也显著大于 0° 扫描角度下的差异，这表明 LPFM 差异与横向扭转差异之间存在很强的相关性。然而，在两个扫描角度下，横向扭转差异均未呈现面外和面内畴结构的任何特征，这意味着横向剪切或横向摩擦不会影响较大的 LPFM 差异。

B. 可 能与悬臂梁横向

扭转

为了更好地理解SPM扫描的原理，我们展示了样品、载物台和悬臂梁的运动示意图，这些运动随扫描角度变化，如图2(a)所示。在SPM扫描中，支撑样品的载物台

在xy平面内移动，但固定在悬臂梁夹具上的探针-悬臂梁-芯片系统在xy平面内保持静止，并沿z轴移动。尽管悬臂梁不会在xy平面内移动，但我们可以将其有效运动方向定义为与移动台的运动方向相反。安装在悬臂梁末端的扫描探针显微镜探针沿快速扫描方向往返扫描一条扫描线，分别进行正向扫描（第一次扫描）和反向扫描（第二次扫描）。扫描完该扫描线后，探针沿慢扫描方向移动一段极短的距离。慢扫描方向即成像方向，与快速扫描方向垂直。随后，探针通过正向扫描和反向扫描对下一条扫描线进行扫描。当悬臂梁的快速扫描方向与其长轴平行时，扫描角度为0°；当悬臂梁的快速扫描方向与其长轴垂直时，扫描角度为90°。

图2(b)展示了样品运动和悬臂梁倾斜随扫描角度变化的示意图。在 PFM 和横向力显微镜等接触模式中，由于探针与样品表面接触，且横向摩擦使其充当支点，悬臂梁会沿与样品运动相反的方向发生垂直倾斜（屈曲）和/或横向倾斜（扭转）；扫描角度为 90° 时，其横向扭转最大。具体而言，扫描角度在 90°以内越大，悬臂梁的横向倾斜越明显：正向扫描时向右（+y 方向）倾斜，反向扫描时向左（-y 方向）倾斜。随着恒定偏转模式 [34]，（即 PFM 中用于形貌测量的模式）的扫描角度增大，正向扫描与反向扫描之间的平均横向偏转差异（横向扭转差异）增大，而正向扫描与反向扫描之间的平均垂直（纵向）偏转差异在理论上保持不变。

在 LPFM扫描过程中，正弦交流调制电压激发的面内极化通过逆压电效应，使悬臂梁顺时针或逆时针横向振荡。在 90° 扫描角度下，正向扫描时，悬臂梁向右倾斜，平均横向偏转为正；反向扫描时，悬臂梁向左倾斜，平均横向偏转为负。因此，正向扫描和反向扫描时，悬臂梁均在横向倾斜的位置振荡，但振荡方向相反。图2(c)展示了在 LPFM扫描中，90° 扫描角度下，电场从探针指向底电极、方向向下时，悬臂梁横向振荡的示意图，以及悬臂梁横向振荡的驱动力对其振荡的影响。若驱动力为面内压电响应，则悬臂梁横向振荡所反映的 LPFM 相位为同相；若驱动力为面外分量，即面外压电响应和非局域静电力，或其他因素（如横向摩擦、接触共振频移和横向滞后），则 LPFM 相位会呈反相。具体而言，在向下电场作用下，由于剪切应变（d_{15}^{eff}），在正向扫描和反向扫描中，悬臂梁在指向右侧的（+y 方向）面内畴上均顺时针向右（+y 方向）倾斜（同相），LPFM 振幅和相位因而相似，横向压电力显微镜偏差可忽略。另一方面，在向下畴上，由于垂直应变（d_{33}^{eff}），探针与样品表面接触处充当支点，悬臂梁在正向扫描时顺时针向右（+y 方向）倾斜，或在反向扫描时逆时针向左（-y 方向）倾斜（反相）。同样，在向下畴上，由于非局域静电力 [35]，悬臂梁在正向扫描时顺时针向右（+y 方向）倾斜，或在反向扫描时逆时针向左（-y 方向）倾斜（反相）。其他因素，如横向摩擦、接触共振频移和横向滞后，也可能诱发悬臂梁向相反方向横向倾斜

正向扫描和反向扫描中的方向（反相）。

C. 横向压电响应力显微镜信号对悬臂梁横向扭转依赖性的详细分析

为研究悬臂梁横向扭转对压电力显微镜偏差的影响，我们在图1所示的同一区域进行压电力显微镜扫描，扫描角度从 -90° 到 90°，步进角度为 15°，如图 S1 所示；并计算了相应的差异图，如图 S2 所示。为排除悬臂梁调谐、湿度和温度等实验因素的影响，我们没有按扫描角度从 -90° 到 90° 的顺序依次进行压电力显微镜扫描。

图3(a)展示了从图S2中提取的横向扭转差异随扫描角度的变化关系。正如上一节所述，扫描角度越大，正向扫描与反向扫描之间的横向扭转差异也越大。这表明，无论畴结构如何，P(VDF-TrFE)薄膜都具有摩擦各向同性[36]。扫描角度为正或负时，横向扭转差异分别为正或负，因为在正向扫描中，扫描角度为正时悬臂梁向右（+y方向）移动，而扫描角度为负时则向左（-y方向）移动。

图S1和图S2更详细地展示了垂直压电显微镜和横向压电力显微镜的差异随横向扭转差异的变化趋势。与微不足道的垂直压电显微镜差异相反，横向压电力显微镜差异与横向扭转差异成正比。具体而言，随着扫描角度增大，当悬臂梁向右横向倾斜（+y方向）时，横向压电力显微镜相位在上极化畴中主要增大，在下极化畴和未极化区域中则减小；这对应于扫描角度为正时的正向扫描，或扫描角度为负时的反向扫描。另一方面，当悬臂梁向左横向倾斜（-y方向）时，变化趋势则相反。

图 3(b)–3(g) 展示了差异图（图 S2）的直方图，以进行定量分析。随着扫描角度增大，LPFM 振幅差异峰变得更低、更宽，而垂直压电力显微镜振幅差异峰则略微向负值偏移。同样，随着扫描角度增大，横向压电力显微镜相位差异峰变得更低，其在 60° 至 360° 和 −60° 至 −360° 范围内的两个肩峰随扫描角度成比例增大，而垂直压电力显微镜相位差异峰几乎不变。这些结果表明，横向压电力显微镜偏差与悬臂梁横向扭转成正比，而非悬臂梁屈曲 [13]。

直方图和高斯拟合结果更清楚地显示了横向压电力显微镜相位对面外极化和扫描方向的依赖关系，如图 S3 和 S4 所示。横向压电力显微镜相位在 0° 和 180° 附近的两个峰会随扫描角度和面外极化而发生不对称变化。在向上畴上，随着扫描角度增大，在正向扫描中，0° 附近的峰几乎不移动，只略微变尖；而 180° 附近的峰则逐渐向较低值移动，并变宽。另一方面，在反向扫描中，0° 附近的峰逐渐向较低值移动，并变宽；而 180° 附近的峰几乎不移动，且变尖。在向下畴上，横向压电力显微镜相位的变化趋势相反。这表明，P(VDF-TrFE)薄膜中的横向压电力显微镜相位差异强烈依赖于面外压电响应，这可在面外压电响应引起悬臂梁横向运动的框架下得到解释 [图 3(c)]。

D. 面外压电响应与非局域静电作用贡献的比较 **ce**

为探究面外分量（如面外压电响应和非局域静电力）对横向压电力显微镜偏差的贡献 [图2(c)], ，我们在铁电氧化物和聚合物薄膜的方框图案化的上极化和下极化畴上，以 90° 扫描角度进行了压电力显微镜测量。图 4 展示了 PZT 薄膜和 P(VDF-TrFE)薄膜中方框图案化畴的垂直压电力显微镜图及横向压电力显微镜差异图。氧化物薄膜和聚合物薄膜都出现了方框图案化的横向压电力显微镜偏差；如上、下极化畴的横向压电力显微镜相位高斯拟合结果所示，聚合物薄膜中的偏差大得多（见图 S6）。这表明，横向压电力显微镜偏差可能普遍存在于各种材料中，其大小取决于材料的性质，例如压电常数、介电常数、弹性模量、机电耦合系数和机械阻尼。然而，我们发现，所有样品中的横向扭转及其差异都不具有任何方框图案特征，如图 S3 所示，这意味着横向摩擦并非造成横向压电力显微镜偏差的主要因素。

如上一节所述，面内畴边界处的横向压电力显微镜相位差异与面外极化的极性以及 d_{33}^{eff} 和 d_{15}^{eff} 系数的符号密切相关。例如，在 d_{33}^{eff} 和 d_{15}^{eff} 系数为正的 PZT 薄膜中，下极化畴内的差异主要为正；而在 d_{33}^{eff} 和 d_{15}^{eff} 系数为负的聚偏氟乙烯-三氟乙烯共聚物薄膜中，下极化畴内的差异则主要为负 [26]。横向压电力显微镜相位差异呈现相反的变化趋势，这表明该差异主要源于取决于面外极化极性的面外压电响应，而非与对称面外极化的极性无关的非局域静电力。因此，对探针施加直流偏置电压（V_{dc}）无法减轻横向压电力显微镜偏差，因为面外压电响应对 V_{dc}的依赖较弱，而非局域静电力对 V_{dc}的依赖较强。

值得注意的是，即使在 50 nm PZT 薄膜中 VPFM 振幅信号非常微弱的面外畴（外框）内，也出现了 LPFM 信号差异。VPFM 振幅信号微弱，可能是因为面外压电响应被不可忽略的非局域静电力抵消了。事实上，外框区域的面外压电响应对 LPFM 信号的影响，与 VPFM 振幅信号较大的内框区域相似。图 S1 和 S2 中 LPFM 信号差异与 VPFM 振幅信号不成正比，原因可能与此处相同。

为了进一步分析 LPFM信号对面外压电响应和非局域静电力的依赖关系，我们采用弹簧常数较低的柔性悬臂梁（~0.13 N/m）来最大限度地增强静电效应，因为柔性悬臂梁会受到较强的非局域静电效应影响 [5,37]。图5(a)展示了使用弹簧常数为 ~2.71 N/m 的悬臂梁对 P(VDF-TrFE)薄膜中方框图案化的上极化和下极化畴进行成像所获得的 PFM结果，其中 VPFM 相位信号分别为 0° 和 180°。相比之下，图5(b)中使用柔性悬臂梁获得的 VPFM 相位信号几乎全部为 180°，且没有出现畴边界特征，这意味着柔性悬臂梁受到了显著的静电效应影响。

尽管压电力显微镜相位信号表明扫描区域内存在向下极化，但横向压电力显微镜相位差异在向下极化区域主要呈负值，而在向上极化区域略呈正值，这与图1d和图4d中的先前结果一致。这表明，与静电力相比，横向压电力显微镜相位差异对面外极化更加敏感。此外，在对方框图案化畴进行压电力显微镜扫描期间，我们通过向探针施加直流偏置电压（V_{dc}）来调节静电力。在探针依次施加0 V、+2 V、+4 V、-2 V和-4 V的情况下，沿方框图案化畴中心线进行连续扫描，由于静电效应可能与（V_{CPD}-V_{dc}）呈线性关系，因此垂直压电力显微镜振幅信号发生了显著变化，其中V_{CPD} 是探针-悬臂梁系统与样品之间的接触电势差 [6] [图5(c)]。在线扫描过程中，面外极化在施加V_{dc} 为+4 V和-4 V的电压时发生了部分翻转。尽管垂直压电力显微镜振幅信号发生了显著变化，最大变化幅度达到15倍，但横向压电力显微镜相位差异并未发生反转或显著变化。这表明，横向压电力显微镜相位差异主要取决于面外极化，而非非局域静电力。

我们还通过在压电力显微镜扫描过程中对探针分别施加 0 V、-4 V 和 +4 V，调节了悬臂梁上的静电效应；图 5(a) 中使用的弹簧常数为 ~2.71 N/m [图 5(d)-5(f)]。VPFM 信号受到探针偏压的显著影响。分别在探针偏压为 -4 V 时，向上极化畴中的垂直压电力显微镜振幅信号增强；在探针偏压为 +4 V 时，向下极化畴中的该信号增强。VPFM 相位信号反映了占主导地位的向上畴或向下畴，以及探针偏压为 -4 V 时的部分向上翻转和探针偏压为 +4 V 时的部分向下翻转。横向压电力显微镜相位差异对面外极化的部分翻转较为敏感，其表现为相对于面外极化发生部分变化，而非受到静电效应影响。在 P(VDF-TrFE)薄膜中，面外极化朝上或朝下，可分别由横向压电力显微镜相位差异中的主要正（蓝色）或负（红色）边界区域表示。这种用于标记面外极化的新方法有望对面外极化的复杂分布进行细致区分。

如果面外压电响应是主导因素，根据一个简单的假设，它会随扫描方向不同而增强或抑制悬臂梁横向振荡。图 6 展示了面外压电响应和面内压电响应驱动悬臂梁横向振荡的假想示意图。例如，在铁电薄膜中，若系数 [为正，且在向下极化、向右指向的面内畴上施加向下电场，并采用 90° 扫描角度，则在正向扫描和反向扫描过程中，面内压电响应都会使悬臂梁向右顺时针横向倾斜（0° LPFM 相位）d_{33}^{eff} 和 d_{15}^{eff} [图 6(a)]。此时，在正向扫描中，顺时针悬臂梁横向扭转会增强，因为面外压电响应抬起探针（悬臂梁-探针-样品系统的支点）时，悬臂梁还会额外顺时针倾斜，这可能导致 LPFM 振幅增大、LPFM 相位降低。另一方面，在反向扫描中，顺时针悬臂梁横向扭转会受到抑制，因为面外压电响应抬起探针时，悬臂梁会逆时针倾斜，这可能导致 LPFM 振幅减小、LPFM 相位升高 [见图 5(a)]。因此，在向下极化、向右指向的面内畴上，LPFM 振幅差异为正，相位差异为负。

表 1 根据直方图总结了主导的面外压电响应假设和实验所得到的 LPFM信号。与假设相比，面内畴上 LPFM 相位的实验结果部分

吻合，而 LPFM 振幅的实验结果则全都呈相反趋势。这些相反结果的成因尚不明确，目前仍是一个悬而未决的问题，但至少面外压电响应似乎比非局域静电力更占主导，因为面内畴边界处的横向压电力显微镜相位取决于面外压电响应。

E. 非局域静电力可能产生的影响

非局域静电力是否完全不会影响 LPFM 偏差？为排除面外极化极性造成的影响，我们选择了一块具有向下极化的 BFO 薄膜。图7展示了 BFO 薄膜在顺时针旋转 90° 前后（ϕ）的 LPFM信号和横向扭转。无论样品位置如何，LPFM 偏差都与横向扭转差异成正比，这表明 LPFM 偏差的主要成因并非 PFM 扫描条件，例如样品相对于悬臂梁横向扭转方向的倾斜。LPFM 振幅差异主要出现在面内畴内部；相对于悬臂长轴，面内左向畴中的差异为正，向右指向的面内畴中的差异为负，如图1所示。由于 BFO 薄膜具有向下极化，几乎所有正的 LPFM 相位差异都主要出现在面内畴边界处。

请注意 90° 扫描角度的情况。与正向扫描相比，反向扫描时，向左指向（-y 方向）的面内畴中的 LPFM 振幅信号较弱，而向右指向（+y 方向）的面内畴中的信号较强，导致面内畴边界模糊。此外，反向扫描中的向右指向面内畴明显更大，在更极端的情况下甚至可能覆盖整个区域。LPFM 信号对扫描角度和横向扭转的更详细依赖关系见图 S7。这一现象类似于以下情况：由于悬臂梁与样品之间存在显著的非局域静电力，面外畴边界处的垂直压电力显微镜振幅信号模糊不清，且向上和向下畴之间的垂直压电力显微镜相位信号没有发生相位反转 [6,37]。换言之，非局域静电力可能在一定程度上导致横向压电力显微镜偏差。

F. 显著的非局域静电力

在上一节中，我们讨论了整个区域几乎都被一个面内畴覆盖的极端情况，这可能是由极强的非局域静电力造成的。为验证这一极端情况，我们在具有向下极化的 PZT 薄膜边缘进行了压电力显微镜测试，具体情况与图 8 所示的 BFO 薄膜情况相同。悬臂梁与样品之间相对于悬臂梁长轴的非局域静电力呈对称状态 [图 8(a)] 或非对称状态 [图 8(b) 和图 8(c)] 。在对称情况下，由于悬臂梁长轴垂直于样品边缘，非局域静电力可能会对正向扫描和反向扫描中的 LPFM信号产生同样微小的影响。另一方面，在非对称情况下，由于悬臂梁长轴平行于样品边缘，静电力可能会在正向扫描和反向扫描中对 LPFM信号产生方向相反的影响。图 S8 展示了悬臂梁和样品相应的光学显微镜图像。

在对称情况下，如前所述，只有当扫描角度为 90° 时才会出现显著的横向压电力显微镜偏差。然而，在非对称情况下，无论悬臂梁横向扭转、扫描角度和扫描方向如何，横向压电力显微镜相位差异都主要受样品相对于悬臂梁的位置控制。当样品位于悬臂梁左侧时，横向压电力显微镜相位信号主要代表指向左侧（-y 方向）的面内畴，即面内极化指向样品的面内畴 [图 8(b)], ；横向压电力显微镜振幅信号在正向扫描中更大，此时悬臂梁发生横向倾斜并远离样品。另一方面，当样品位于悬臂梁右侧时 [图 8(c)], , 无论样品的哪一条边缘，横向压电力显微镜相位信号都主要呈现指向右侧的（+y 方向）面内畴，即面内极化指向样品的面内畴；横向压电力显微镜振幅信号在反向扫描中更大，此时悬臂梁发生横向倾斜并远离样品。这些结果表明，在某些极端情况下，非局域静电力对 LPFM信号的影响可能比面外压电响应更显著。横向压电力显微镜振幅信号的反向趋势清晰地呈现在横向压电力显微镜振幅差异图中。

需要指出的是，在所有非对称情况下，当悬臂梁横向倾斜且远离样品时，LPFM 振幅信号较大，LPFM 相位信号的方向性也更强；而当悬臂梁横向倾斜且靠近样品时，情况则相反。这可能是由于方向相反的非局域静电力相互竞争所致。例如，当悬臂梁位于样品下边缘处 [图 8(b)], 时，LPFM信号会受到 -y 和 +y 方向上的非局域静电力以及面内压电响应的影响。由于样品位于悬臂梁左侧（y 轴值更负），-y 方向上的非局域静电力远大于 +y 方向上的非局域静电力；当悬臂梁横向倾斜且远离样品时，+y 方向上的非局域静电力可能非常弱。因此，当悬臂梁横向倾斜且远离样品时（正向扫描），-y 方向上的非局域静电力占主导；当悬臂梁横向倾斜且靠近样品时（反向扫描），该力的主导作用则较弱。换言之，在正向扫描中，LPFM信号主要受 -y 方向上的静电力影响；而在反向扫描中，这种影响较弱。因此，由于 -y 方向上的非局域静电力占主导，正向扫描中的 PFM结果将呈现较大的振幅信号和方向性更强的相位信号；而反向扫描中的 PFM结果则会呈现相对较小的振幅信号和方向性相对较弱的相位信号，这是因为 -y 方向上的非局域静电力作用较弱，且较弱的面内压电响应也参与其中。

G. 压电响应力显微镜模式

研究表明，面外分量（如面外压电响应和非局域静电力）可能会显著影响LPFM信号，但横向摩擦与横向压电力显微镜偏差无关。为验证其他因素（如悬臂梁-探针-样品系统的接触共振和横向滞后）的影响，按照图S9所示，在P(VDF-TrFE)薄膜的向上和向下极化畴上，分别采用非共振压电力显微镜模式和双频共振跟踪横向压电力显微镜模式进行了压电力显微镜测量。这些畴是按照图1所示的相同流程制备的。双频共振跟踪横向压电力显微镜模式采用两个振幅，分别对应于

两个驱动频率，这两个频率相差一定的频率，分别低于（驱动频率1）或高于（驱动频率2）接触共振频率；通过移动驱动频率，跟踪接触共振频移，直至两个振幅之差为零 [38]。非共振压电力显微镜模式下，垂直压电力显微镜的驱动频率为17 kHz，横向压电力显微镜的驱动频率为37 kHz；双频共振跟踪横向压电力显微镜模式下的驱动频率约为687 kHz。这里，横向扭转差异未呈现任何畴特征（图S9c），这意味着横向摩擦并非造成较大横向压电力显微镜偏差的主要因素。

图 9 显示了相应的 VPFM 和 LPFM 差异图。在 0° 扫描角度下，非共振 PFM 模式和双频共振跟踪横向压电力显微镜模式的差异并不显著；但非共振 VPFM 模式和双频共振跟踪横向压电力显微镜模式的振幅差异除外，这可能是由悬臂梁垂直扭转（屈曲）较大所致 [13]。此外，扫描角度为 90° 时，非共振 VPFM 模式的差异并不大。然而，不使用接触共振的非共振 LPFM 模式，以及跟踪接触共振频移的双频共振跟踪横向压电力显微镜模式，在扫描角度为 90° 时均表现出显著的横向压电力显微镜偏差。这些结果表明，接触共振并非造成横向压电力显微镜偏差的主要因素。此外，值得注意的是，在非共振 PFM 中，仅当扫描角度为 90° 时，VPFM 振幅信号较大的下极化畴中的 LPFM 振幅才大于上极化畴（图 S9a）。这表明面外压电响应参与了非共振 LPFM 信号的形成。

为便于比较，表2总结了在90° 扫描角度下，正向与反向扫描中影响横向压电力显微镜信号和横向压电力显微镜偏差的关键因素。首先，面内压电响应通过剪切应变（d_{15}）使悬臂梁沿同一方向发生横向扭转，因此无论扫描方向如何，横向压电力显微镜偏差都可以忽略不计。其次，面外压电响应会通过垂直应变（d_{33}）使悬臂梁沿相反方向发生横向扭转，这会显著影响横向压电力显微镜信号和横向压电力显微镜偏差。第三，悬臂梁与样品之间的非局域静电力会通过方向相反的电力使悬臂梁沿相反方向发生横向扭转，其影响小于面外压电响应，但在样品边缘扫描等某些极端情况下，其影响则重要得多。横向摩擦、PFM 模式和横向滞后等其他因素会导致机械诱导信号延迟，对横向压电力显微镜信号的影响微不足道。由于较大扫描角度下横向压电力显微镜偏差较为严重，我们建议横向压电力显微镜扫描采用0°扫描角度，以排除这一偏差，并仔细分析通过正向与反向扫描获得的横向压电力显微镜结果。

IV. 结论

总之，我们研究了正向扫描与反向扫描之间LPFM信号的显著差异，这种差异会随着悬臂梁横向扭转的增大而增大，且与PFM模式无关。LPFM信号中的差异远比VPFM信号中的差异严重，并且普遍存在于各种类型的铁电材料中，例如氧化物和聚合物。通过受控实验，我们发现，LPFM偏差主要源于面外压电响应，但在某些情况下，也可能由悬臂梁与样品之间的非局域静电力主导。

在极端情况下也是如此。我们的研究将深入揭示纳米尺度面内表面运动的特征，并实现对铁电畴更准确的可视化。

致谢

本研究是在 KAIST 资助的2021年和2022年全球奇点研究计划（项目编号：1711100689）框架下开展的，同时获得了大韩民国教育部和韩国国家研究基金会的支持（NRF-2019S1A5C2A03081332）。

参考文献

[1] Y. Sharma、R. Agarwal、C. Phatak、B. Kim、S. Jeon、R. S. Katiyar 和 S. Hong，外延生长于（100）$NdGaO_3$ 衬底上的（110）$BiFeO_3$ 薄膜中的长程条纹纳米畴，《Sci. Rep.》7，4857（2017）。[2] M. Park、S. Hong、J. A. Klug、M. J. Bedzyk、O. Auciello、K. No 和 A. Petford-Long，利用角分辨压电响应力显微镜对外延 $BiFeO_3$ 薄膜进行三维铁电畴成像，《Appl. Phys. Lett.》97，112907（2010）。[3] K. Chu 和 C. H. Yang，高分辨率角分辨横向压电响应力显微镜：面内压电响应矢量的可视化，《Rev. Sci. Instrum.》89，123704（2018）。[4] R. K. Vasudevan、N. Balke、P. Maksymovych、S. Jesse 和 S. V. Kalinin，铁电还是非铁电：为何如此多的材料在纳米尺度表现出“铁电性”，《Appl. Phys. Rev.》4，021302（2017）。[5] N. Balke、P. Maksymovych、S. Jesse、A. Herklotz、A. Tselev、C.-B. Eom、I. I. Kravchenko、P. Yu 和 S. V. Kalinin，利用扫描探针显微镜区分铁电与非铁电机电效应，《ACS Nano》9，6484（2015）。[6] S. Hong、J. Woo、H. Shin、J. U. Jeon、Y. E. Pak、E. L. Colla、N. Setter、E. Kim 和 K. No，利用原子力显微镜进行铁电畴成像的原理，《J. Appl. Phys.》89，1377（2001）。[7] S. Jesse、A. Kumar、T. M. Arruda、Y. Kim、S. V. Kalinin 和 F. Ciucci，电化学应变显微镜：在纳米尺度探测固体中的离子和电化学现象，《MRS Bull.》37，651（2012）。[8] E. A. Eliseev、A. N. Morozovska、A. V. Ievlev、N. Balke、P. Maksymovych、A. Tselev 和 S. V. Kalinin，接触模式电压调制扫描探针显微术中的电致伸缩和静电响应，《Appl. Phys. Lett.》104，232901（2014）。[9] D. Seol、S. Park、O. V. Varenyk、S. Lee、H. N. Lee、A. N. Morozovska 和 Y. Kim，利用频率依赖压电响应力显微镜确定机电响应中的铁电贡献，《Sci. Rep.》6，30579（2016）。[10] N. Balke、S. Jesse、Q. Li、P. Maksymovych、M. Baris Okatan、E. Strelcov、A. Tselev 和 S. V. Kalinin，电流和表面电荷对铁电薄膜滞回环的调制，《J. Appl. Phys.》118，072013（2015）。[11] B. Kim、D. Seol、S. Lee、H. N. Lee 和 Y. Kim，源于非铁电效应的类铁电滞回环，《Appl. Phys. Lett.》109，102901（2016）。[12] F. Johann、T. Jungk、S. Lisinski、Á. Hoffmann、L. Ratke 和 E. Soergel，利用压电响应力显微镜研究溶胶-凝胶衍生铁电纳米颗粒，《Appl. Phys. Lett.》95，202901（2009）。[13] R. Nath、S. Hong、J. A. Klug、A. Imre、M. J. Bedzyk、R. S. Katiyar 和 O. Auciello，悬臂梁屈曲对 $BiFeO_3$ 纳米结构中铁电畴矢量压电响应力显微成像的影响，《Appl. Phys. Lett.》96，163101（2010）。[14] S. V. Kalinin、B. J. Rodriguez、S. Jesse、J. Shin、A. P. Baddorf、P. Gupta、H. Jain、D. B. Williams 和 A. Gruverman，矢量压电响应力显微镜，《Microsc. Microanal.》12，206（2006）。[15] A. Gomez、T. Puig 和 X. Obradors，通过使用更长或超硬探针减弱压电响应力显微镜中的静电作用，《Appl. Surf. Sci.》439，577（2018）。[16] F. Peter、A. Rudiger、K. Szot、R. Waser 和 B. Reichenberg，铁电纳米结构中压电响应力显微镜的样品-探针相互作用，《IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control》53，2253（2006）。[17] N. Balke、S. Jesse、P. Yu、C. Ben、S. V. Kalinin 和 A. Tselev，通过动态原子力显微镜定量表面位移和机电现象，《Nanotechnology》27，425707（2016）。[18] G. Stan、S. W. King 和 R. F. Cook，利用接触共振原子力显微镜进行纳米尺度接触刚度和阻尼成像，《Nanotechnology》23，215703（2012）。[19] P. A. Yuya、D. C. Hurley 和 J. A. Turner，接触共振原子力显微镜测量黏弹性性质时品质因数与样品阻尼之间的关系，《J. Appl. Phys.》109，113528（2011）。[20] S. Lei、E. A. Eliseev、A. N. Morozovska、R. C. Haislmaier、T. T. A. Lummen、W. Cao、S. V. Kalinin 和 V. Gopalan，加偏压扫描探针显微镜探针跨越180◦铁电畴壁时压电响应的起源，《Phys. Rev. B》86，

134115 (2012).[21] A. Labuda 和 R. Proksch，使用光束与干涉式原子力显微镜组合定量测量机电响应，Appl. Phys. Lett. **106**, 253103 (2015).[22] S. Bradler、A. Schirmeisen 和 B. Roling，基于接触共振的电压调制力谱中的振幅定量，J. Appl. Phys. **122** (2017).[23] D. Seol、B. Kim 和 Y. Kim，压电响应力显微镜中的非压电效应，Curr. Appl. Phys. **17**, 661 (2017).[24] J. Kim，博士论文，韩国科学技术院，2021年。[25] B. Kim、F. P. Barrows、Y. Sharma、R. S. Katiyar、C. Phatak、A. K. Petford-Long、S. Jeon 和 S. Hong，通过角分辨压电响应力显微镜研究图案化（001）$BiFeO_3$ 的铁电畴，Sci. Rep. **8**, 203 (2018).[26] K. Tashiro、M. Kobayashi、H. Tadokoro 和 E. Fukada，点电荷模型计算聚合物晶体的弹性常数和压电常数：应用于聚偏氟乙烯 I 型，Macromolecules **13**, 691 (1980).[27] I. Katsouras、K. Asadi、M. Li、T. B. van Driel、K. S. Kjaer、D. Zhao、T. Lenz、Y. Gu、P. W. Blom、D. Damjanovic、M. M. Nielsen 和 D. M. de Leeuw，铁电聚合物聚偏氟乙烯的负压电效应，Nat. Mater.**15**, 78 (2016).[28] P. Sharma、D. Wu、S. Poddar、T. J. Reece、S. Ducharme 和 A. Gruverman，利用压电响应力显微镜对极性聚合物进行取向成像，J. Appl. Phys. **110**, 052010 (2011).[29] L. You、Y. Zhang、S. Zhou、A. Chaturvedi、S. A. Morris、F. Liu、L. Chang、D. Ichinose、H. Funakubo、W. Hu、T. Wu、Z. Liu、S. Dong 和 J. Wang，层状范德华铁电体中巨负压电性的起源，Sci. Adv. **5**, eaav3780 (2019).[30] Y.-Y. Choi、P. Sharma、C. Phatak、D. J. Gosztola、Y. Liu、J. Lee、B. Lee、J. Li、A. Gruverman、S. Ducharme 和 S. Hong，通过纳米尺度调控微结构增强聚合物铁电体中的局部压电响应，ACS Nano **9**, 1809 (2015).[31] X. Zhang、C. Liu、L. Li、H. Yuan 和 H. Xu，采用对称有机薄膜电极增强 P(VDF-TrFE)共聚物超薄膜中的开关动力学，Org. Electron. **66**, 81 (2019).[32] R. Roth、M. Koch、J. Schaab、M. Lilienblum、F. Syrowatka、T. Band、T. Thurn-Albrecht 和 K. Dörr，在石墨上的 P(VDF-TrFE)薄膜中，通过对齐面内极化使压电响应增强至数倍，New J. Phys. **20**, 103044 (2018).[33] J. L. Bosse 和 B. D. Huey，误差校正原子力显微镜：一种简单且广泛适用的方法，可大幅提高原子力显微镜图像精度，Nanotechnology **25**, 155704 (2014).[34] S. Hong，单频垂直压电响应力显微镜，J. Appl. Phys. **129**, 051101 (2021年).[35] M. D. Brubaker、A. Roshko、S. Berweger、P. T. Blanchard、C. A. E. Little、T. E. Harvey、N. A. Sanford 和 K. A. Bertness，利用横向压电响应力显微镜测量双端氮化镓纳米线器件的晶体学极性，Nanotechnology **31**, 424002 (2020).[36] D. F. O. Jeong Young Park、M. Salmeron、R. A. Ribeiro、P. C. Canfield、C. J. Jenks 和 P. A. Thiel，准晶表面周期性和非周期性方向的高摩擦各向异性，Science **309**, 1354 (2004).[37] S. Hong、H. Shin、J. Woo 和 K. No，悬臂梁–样品相互作用对压电力显微镜的影响，Appl. Phys. Lett. **80**, 1453 (2002).[38] B. J. Rodriguez、C. Callahan、S. V. Kalinin 和 R. Proksch，双频共振跟踪原子力显微镜，Nanotechnology **18**, 475504 (2007).

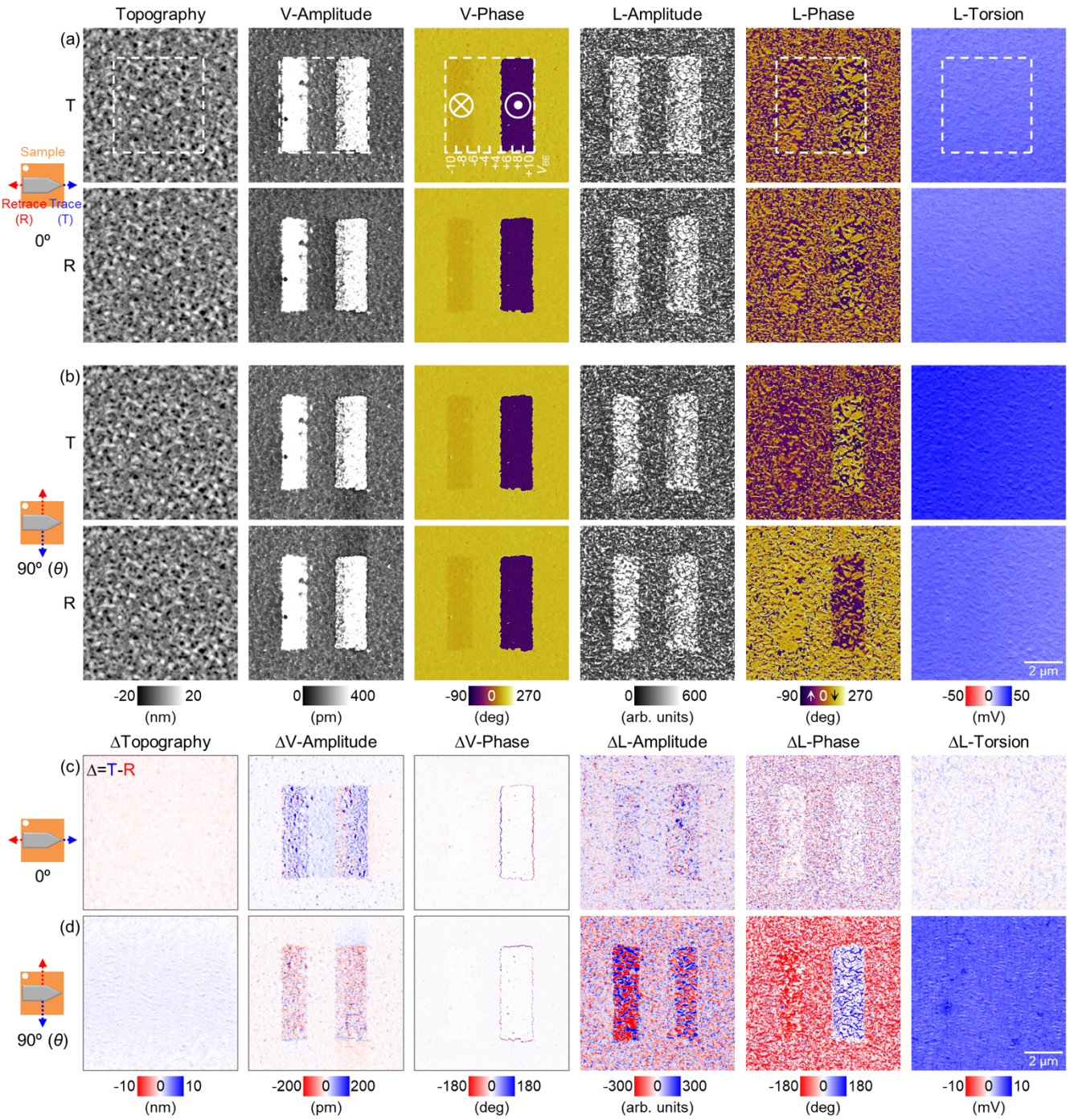

图1. 使用扫描角度（θ）为0°（a）和90°（b）的设置，获得的聚偏氟乙烯-三氟乙烯共聚物薄膜中向上和向下极化畴的形貌、垂直和横向压电力显微镜（VPFM和LPFM）以及横向扭转图像；蓝色和红色虚线箭头分别表示悬臂梁在正向扫描（T）和反向扫描（R）中的快速扫描方向。横向扭转（L-Torsion）与压电力显微镜信号同步测量。通过接地探针从左向右扫描一个4×4 μm^2 区域（虚线框所示），同时以500 nm的间隔向底电极施加-10 V、-8 V、-6 V、-4 V、4 V、6 V、8 V和10 V（V_{BE}），从而形成向上和向下畴。扫描角度（θ）为0°（c）和90°（d）时，形貌、垂直压电力显微镜、横向压电力显微镜和横向扭转的差异（Δ）图；该图由正向扫描图像减去反向扫描图像（T-R）计算得到。

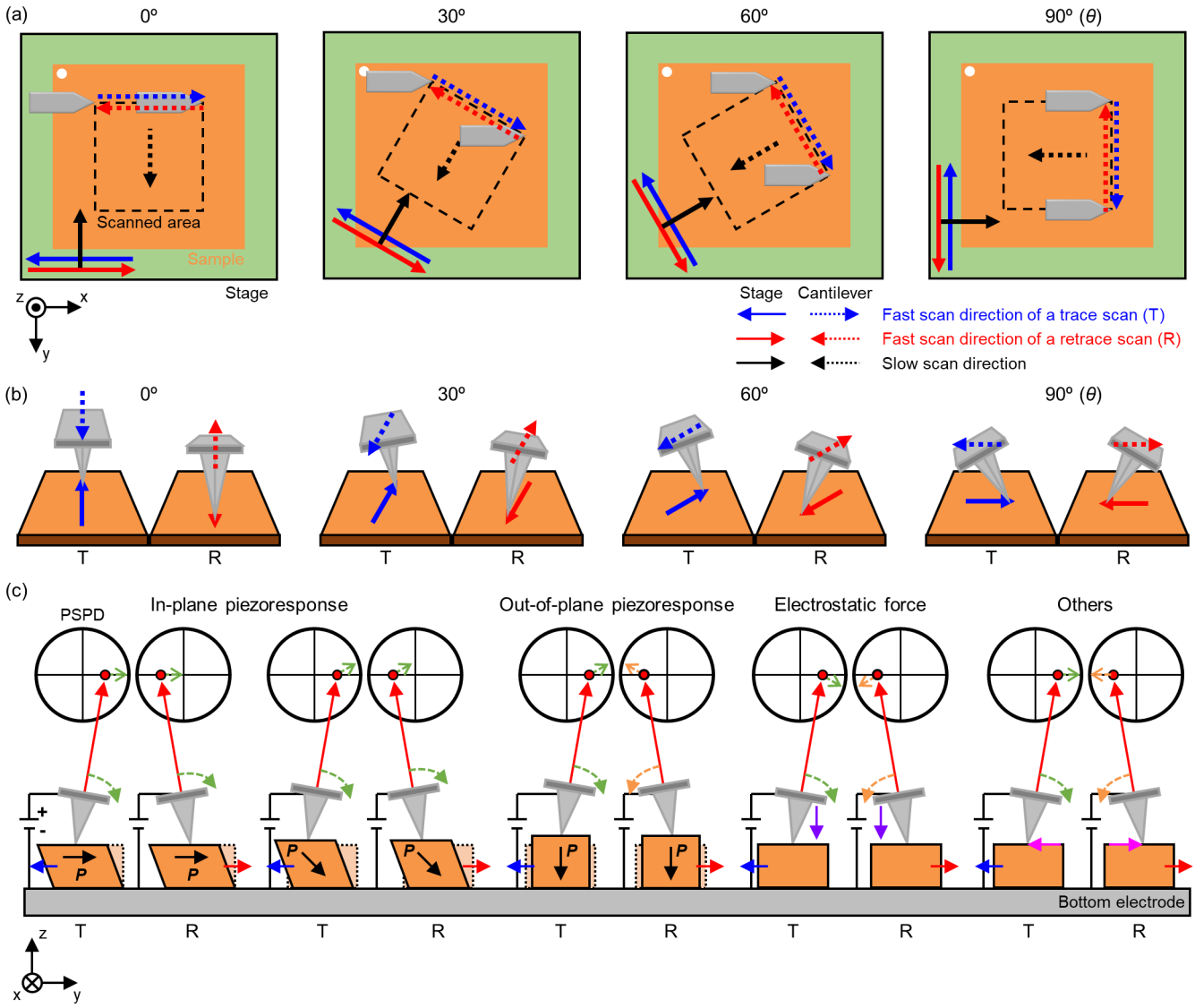

图 2. (a) 俯视图和 (b) 前视图示意图，展示了压电力显微镜扫描过程中悬臂梁、样品和载物台的运动情况：样品固定在载物台上，载物台移动，而悬臂梁固定在悬臂梁夹具上，扫描角度为（θ）。载物台和悬臂梁的扫描方向分别用蓝色、红色和黑色的实线箭头与虚线箭头表示，对应快速正向扫描、快速反向扫描和慢速扫描。悬臂梁的扫描方向与载物台的扫描方向相反。载物台运动导致的悬臂梁横向扭转及其在正向扫描与反向扫描之间的差异，均随扫描角度增大而增大。(c) 后视图示意图，展示了扫描角度为 90° 时 LPFM扫描过程中悬臂梁横向扭转、样品和载物台的运动情况，并以悬臂梁横向扭转的主要影响因素为序：面内压电响应、面外压电响应、非局域静电力，以及横向摩擦、接触共振频移和横向滞后等其他因素。P 表示铁电极化。

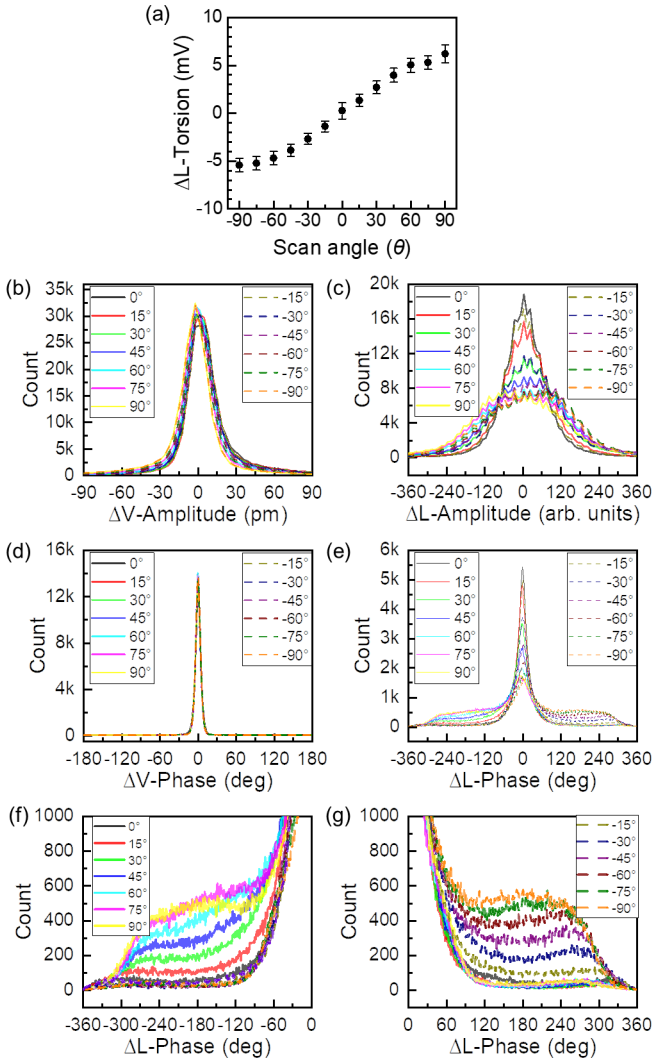

图 3. 根据图 S1 和 S2 计算得到的横向扭转（a）、VPFM（b）和（d）以及 LPFM（c）、（e）、（f）和（g）的差异（Δ）随扫描角度（θ）变化的曲线。图中插图标出了扫描角度。

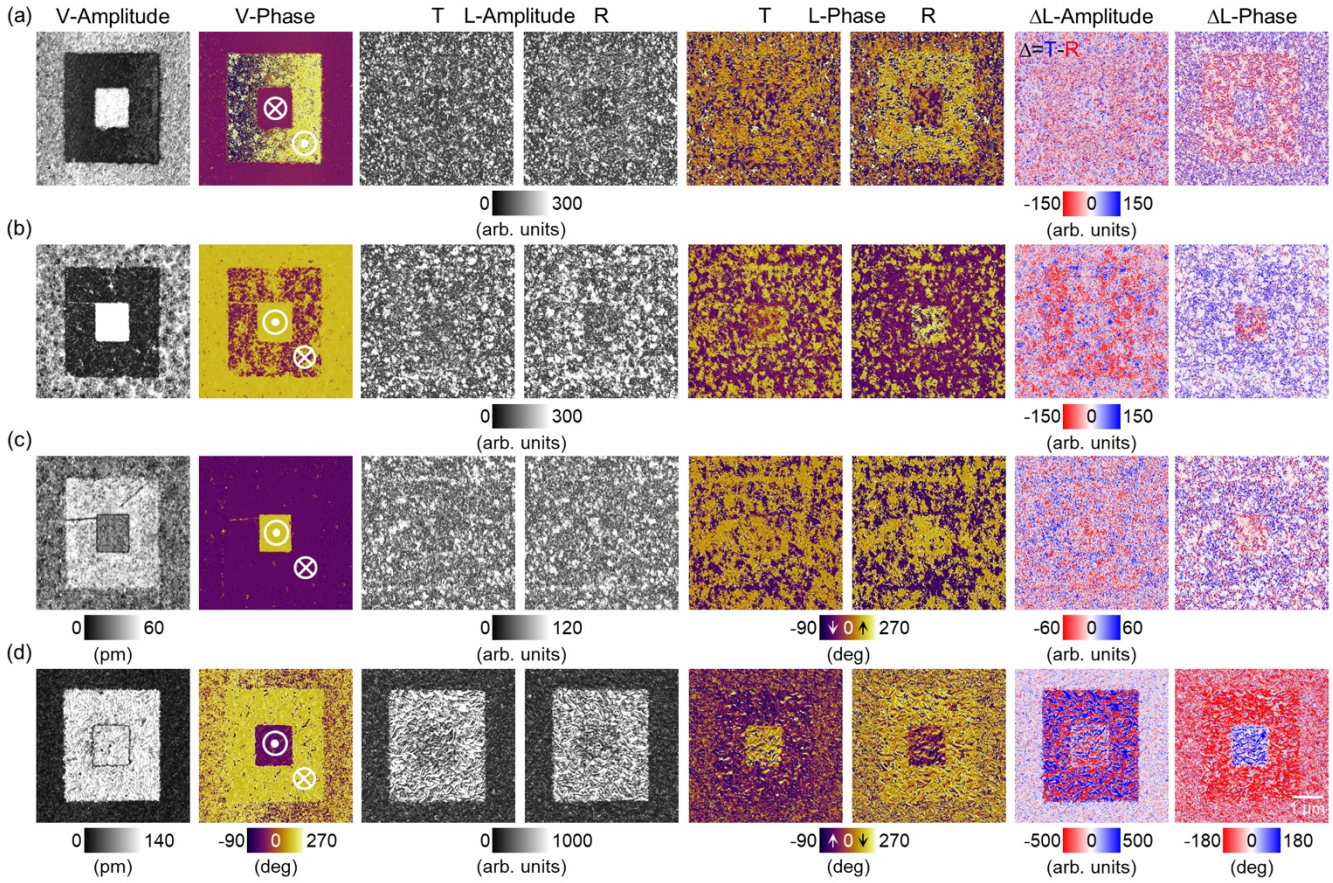

图 4. 在扫描角度为 90° 时获得的铁电氧化物和聚合物薄膜中方框图案化畴的 VPFM 和 LPFM 图像及 LPFM 差异（Δ）图：(a) 50 nm 锆钛酸铅（20/80），(b) 50 nm 锆钛酸铅（52:48），(c) 100 nm 锆钛酸铅（52:48），以及 (d) 20 nm 聚偏氟乙烯-三氟乙烯共聚物。

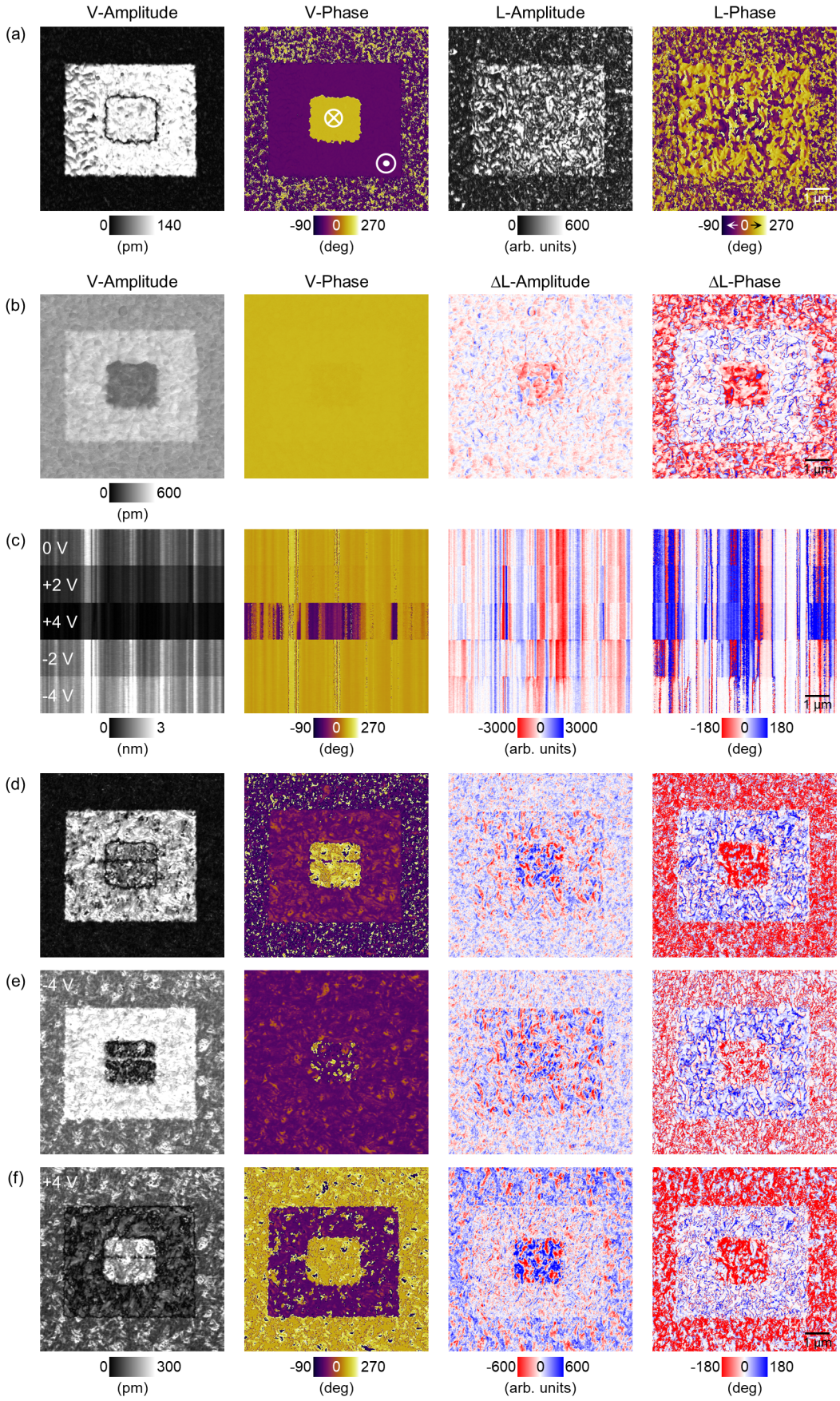

图5。（a）使用弹簧常数为~2.71 N/m、扫描角度为90°的悬臂梁，在P(VDF-TrFE)薄膜的方框图案化畴上获得的垂直压电力显微镜（VPFM）和横向压电力显微镜（LPFM）图像。（b-c）使用弹簧常数为~0.13 N/m的悬臂梁获得的VPFM图像和LPFM差异（Δ）图：（c）在探针对中心施加0 V、+2 V、+4 V、-2 V和-4 V直流偏置电压时，对方框图案化畴中心进行线扫描。（d-f）使用以下条件获得的VPFM图像和LPFM差异（Δ）图。

ca在（a）中使用的悬臂，扫描角度为 90°，同时向探针施加 0 V（d）、-4 V（e）和 +4 V（f） .

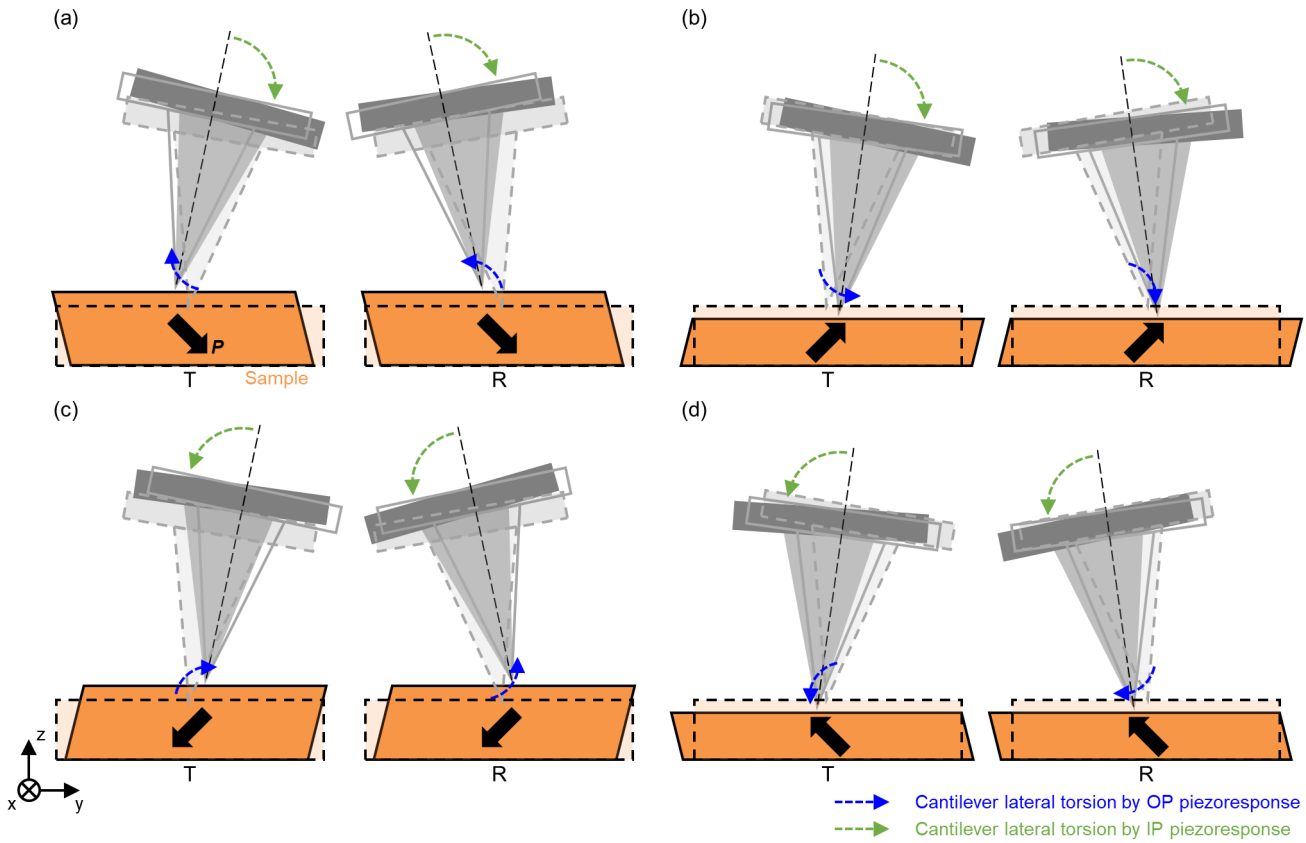

图6. 在向下电场作用下，具有正d_{33}^{eff}和d_{15}^{eff}系数的样品，或在向上电场作用下，具有负d_{33}^{eff}和d_{15}^{eff}系数的样品中，悬臂梁与样品在压电力显微镜扫描中的运动示意图，展示了正向扫描（T）和反向扫描（R）中极化方向为(a)、(b)、(c)和(d)时的情况。

表 1. 主导的面外压电响应假设及实验所得的 LPFM信号 nt

极化方向	面内畴上的 LPFM 振幅 $d_{33}^{eff}, d_{15}^{eff}$			面内畴上的横向压电力显微镜相位 $d_{33}^{eff}, d_{15}^{eff}$			面内畴边界处的横向压电力显微镜相位 $d_{33}^{eff}, d_{15}^{eff}$	
	假设	正	负	假设	正	负	正	负
↘: 向下 / 向右	T > R	T < R	T < R	T < R	T > R	T < R	T > R	T < R
↙: 下 / 左	T < R	T > R	T > R	T > R	T < R	T > R	T > R	T < R
↗: 上 / 右	T < R	T > R	T > R	T > R	T > R	T > R	T < R	T > R
↖: 左上 / 左方	T > R	T < R	T < R	T < R	T < R	T < R	T < R	T > R

T 和 R 表示正向与反向扫描。

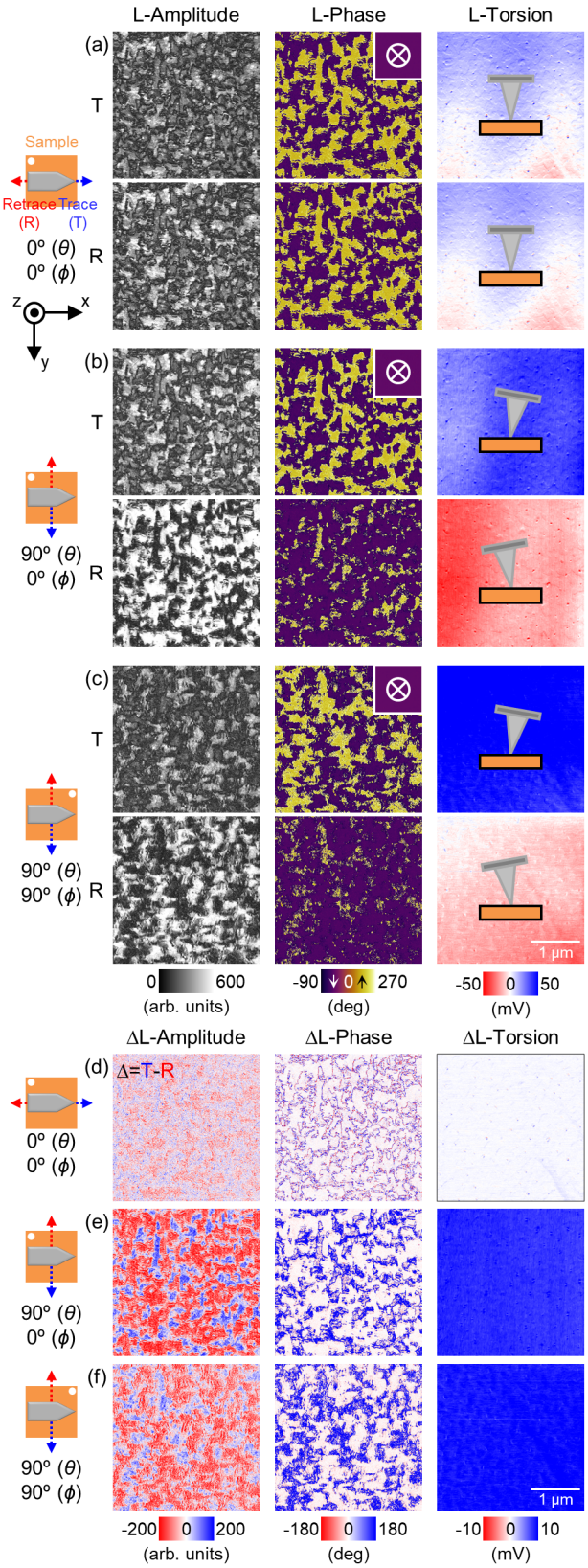

图 7. 扫描角度 (θ) 为 0° (a) 和 90° (b) 时，以及样品顺时针旋转 90° (ϕ) 前 (a) 和 (b) 后 (c)，在 BFO 薄膜上获取的横向压电力显微镜和横向扭转图像。悬臂梁在正向扫描 (T) 和反向扫描 (R) 中的快速扫描方向分别以蓝色和红色虚线箭头标示。插图：对应的垂直压电力显微镜相位图像。横向扭转与压电力显微镜同时测量。横向扭转图像中的插图为悬臂梁横向扭转及压电力显微镜扫描时样品的示意图。(d)、(e) 和 (f) 为横向压电力显微镜与横向扭转的差异 (Δ) 图。

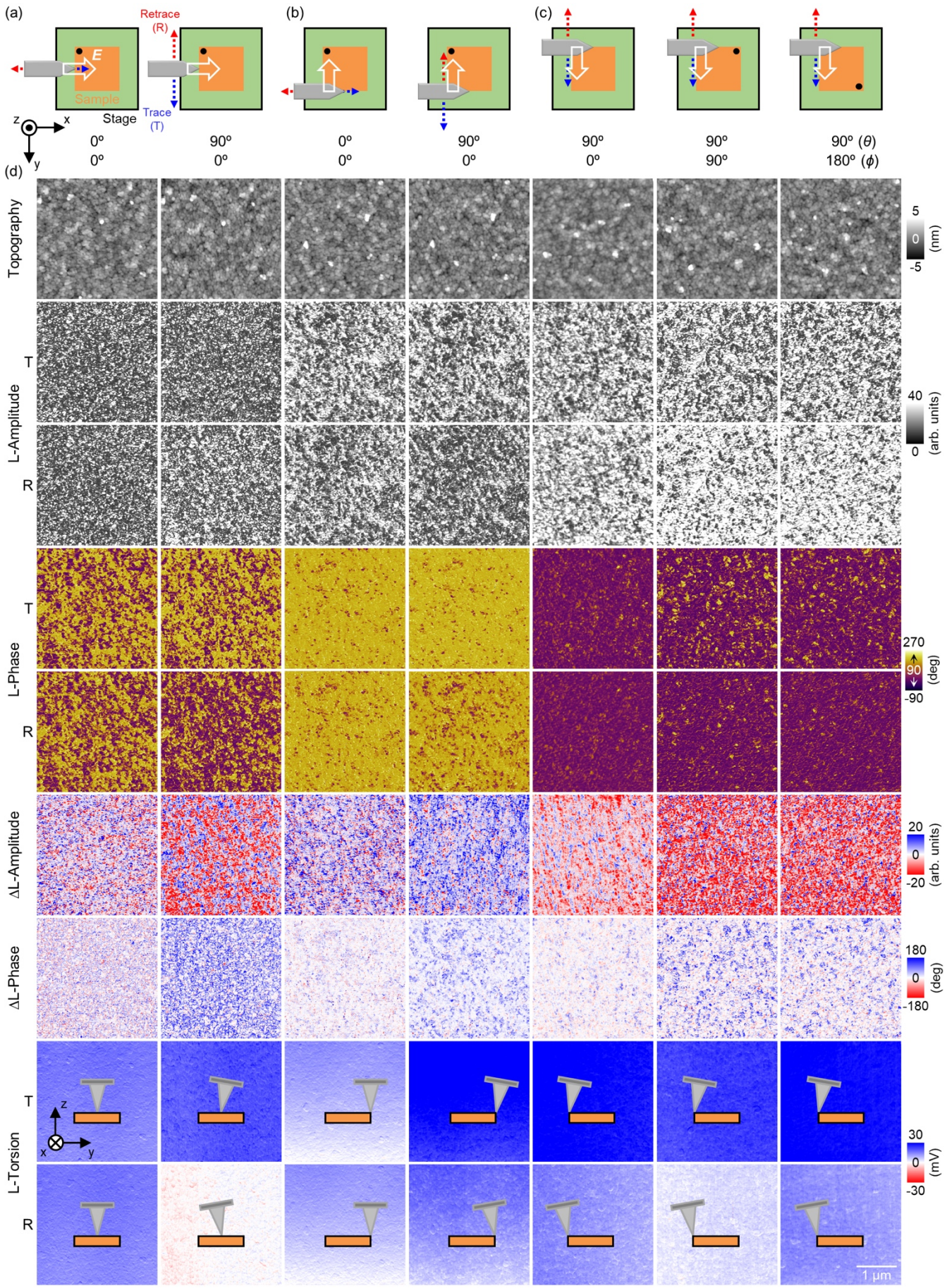

图8. 压电力显微镜扫描中悬臂运动的示意图，其中悬臂梁长轴与样品边缘垂直（a），或与样品边缘平行（b）和（c）；根据扫描角度（θ），悬臂梁在正向扫描（T）和反向扫描（R）中的快速扫描方向分别以蓝色和红色虚线箭头表示。（d）形貌、横向压电力显微镜、横向压电力显微镜差异（Δ）图，

以及 PZT 薄膜上的横向扭转图像随扫描角度（θ）和样品旋转角（ϕ）的变化。悬臂梁与样品之间的非局域静电力（E）的方向以空心箭头表示。横向扭转与压电力显微镜同步测量。横向扭转图像中的插图为压电力显微镜扫描过程中悬臂梁横向扭转和样品的示意图。

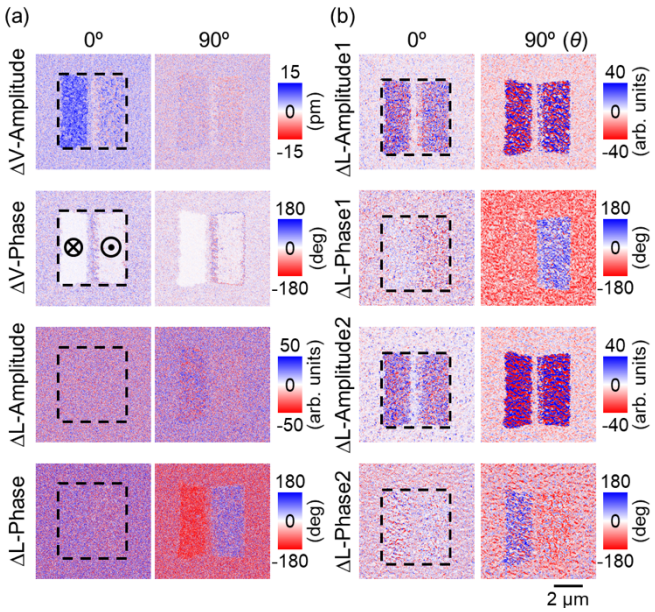

图9. (a) 非共振压电力显微镜模式和 (b) 双频共振跟踪横向压电力显微镜模式的差异（Δ）图。这些图是通过将反向扫描图像从正向扫描图像中减去（T-R）计算得到的，图像采集时，扫描角度（θ）分别为0°和90°，扫描对象为采用与图1相同工艺制备的P(VDF-TrFE)薄膜中的向上和向下极化畴（以虚线框标示）。双频共振跟踪横向压电力显微镜模式中的信号1和信号2分别表示在驱动频率1和驱动频率2下获得的信号。差异图通过将反向扫描图像从正向扫描图像中减去（T-R）计算得到。

表2. 90° 扫描角度下影响LPFM信号的关键因素

驱动力	正向与反向扫描中的行为	对横向压电力显微镜的贡献 discrepancy
面内压电响应	相同剪切应变下同一悬臂梁的横向扭转 in of d_{15}	X
面外压电响应	相同垂直应变 d_{33} 引起的相反悬臂梁横向扭转	主要
非局域静电力	反向悬臂 r lateral torsion 由相同的电力产生	次要（M ajor 位于 sa mple 边缘）
其他（摩擦、PFM 模式、材料等）	M机械信号延迟	次要

补充材料

重新审视 co　横向压电响应力显微镜的衬度机制

Jaegyu Kim，[1,*] Seongwoo Cho，[1] Jiwon Yeom，[1] Seongmun Eom，[1] 和 Seungbum Hong[1,2,*]

[1]材料系　　科学与工程，韩国科学技术院，大田 *34141*，

大韩民国

[2]*KAIST* 纳米世纪研究所，韩国科学技术院，大田 *34141*，大韩民国韩国

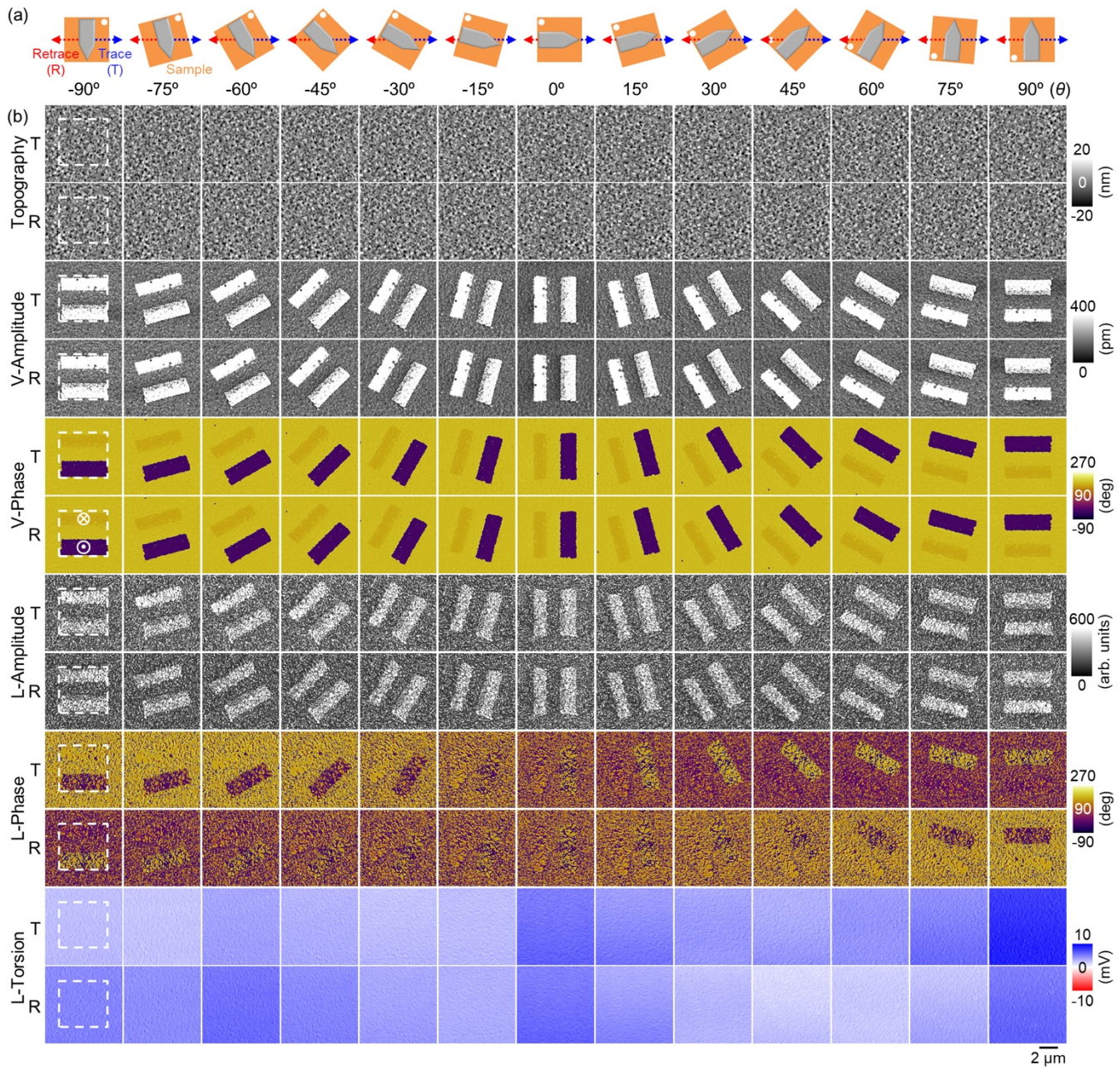

图 S1. (a) 压电力显微镜扫描中悬臂运动的示意图，其中悬臂在正向扫描 (T) 和反向扫描 (R) 中的快速扫描方向以蓝色和红色虚线箭头表示，并随扫描角度 (θ) 变化。(b) 在聚偏氟乙烯-三氟乙烯共聚物薄膜的向上和向下极化畴上获得的形貌、垂直压电力显微镜和横向压电力显微镜（VPFM 和 LPFM）以及横向扭转（L-Torsion）图像；扫描角度 (θ) 分别为 0° (a) 和 90° (b)，悬臂在正向扫描 (T) 和反向扫描 (R) 中的快速扫描方向以蓝色和红色虚线箭头表示。横向扭转与压电力显微镜图像同时测量。使用接地探针从上到下扫描一个 4×4 μm^2 区域（虚线框所示），并在向底电极施加 -10 V、-8 V、-6 V、-4 V、4 V、6 V、8 V 和 10 V 的同时，每隔 500 nm 创建向上和向下极化畴。

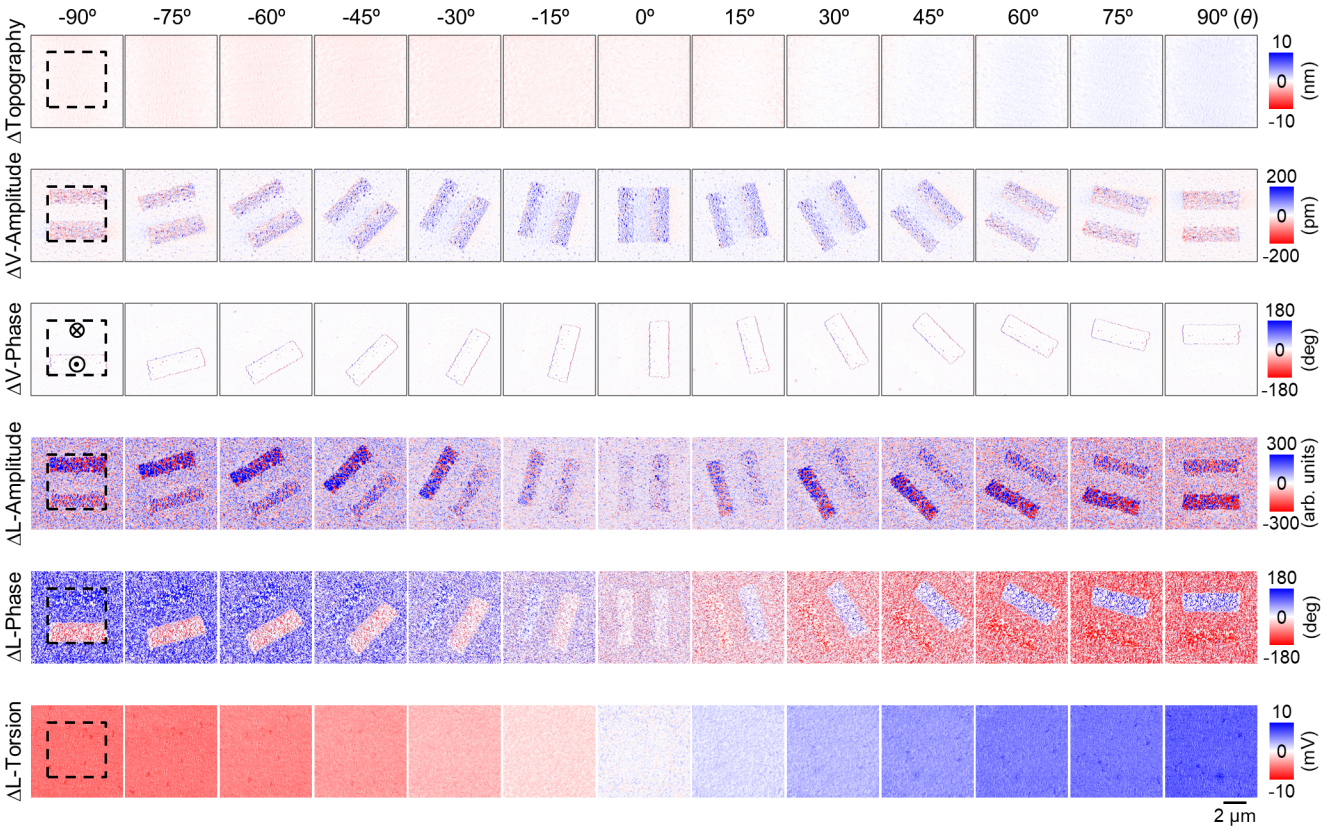

图 S2. 图 S1 中形貌、垂直压电力显微镜、横向压电力显微镜和横向扭转随扫描角度（θ）变化的差异（Δ）图。差异图通过正扫图像减去反向扫描图像（T-R）计算得出。

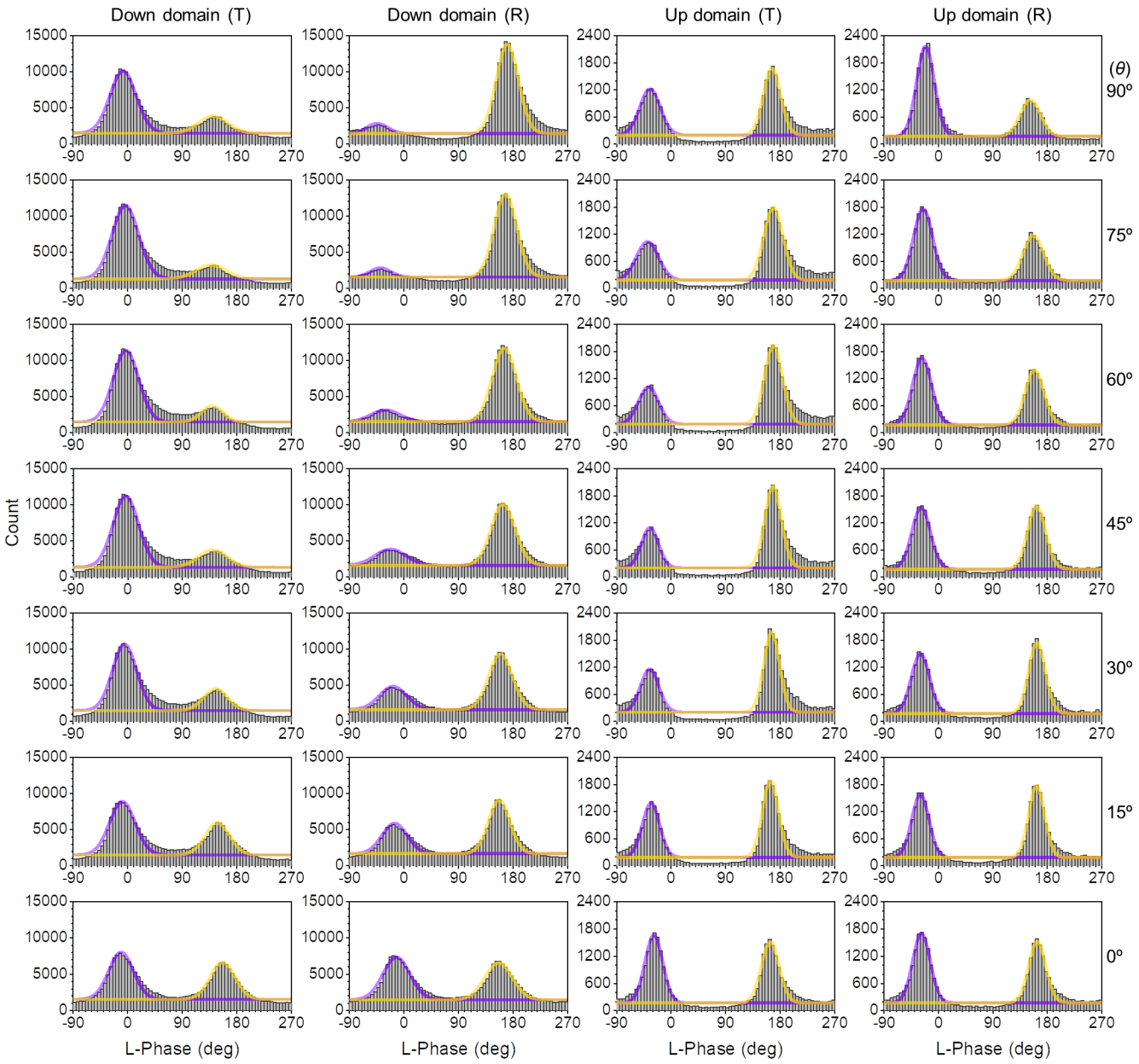

图 S3. 图 S1 中正向扫描（T）和反向扫描（R）时，向上和向下畴的横向压电力显微镜相位直方图及计算得到的高斯拟合随扫描角度（θ）的变化。所有图的分箱大小均为 5。

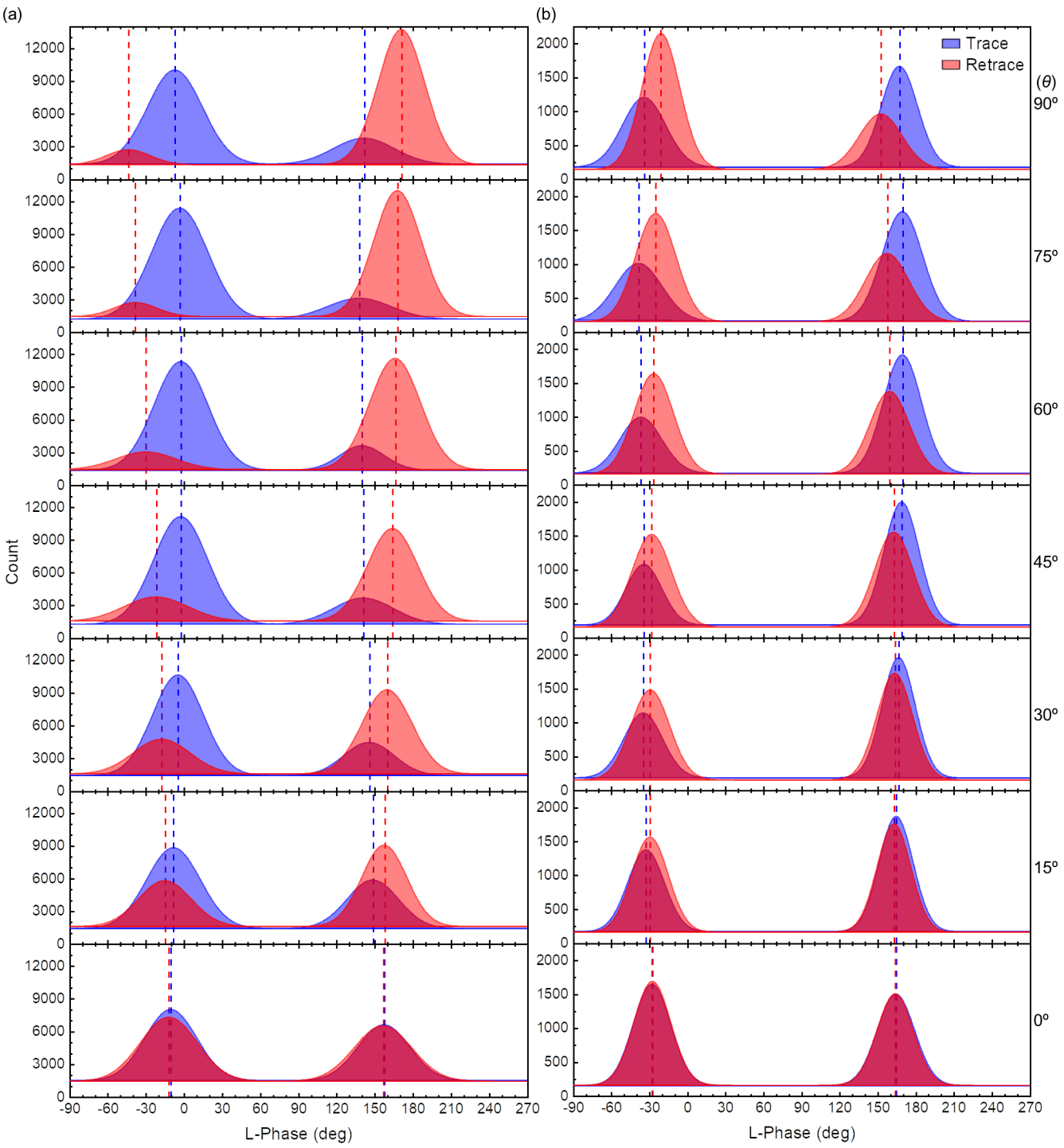

图 S4. 根据图 S3 中正向与反向扫描时上极化（a）和下极化（b）区域的横向压电力显微镜相位直方图进行高斯拟合，结果随扫描角度（θ）变化。

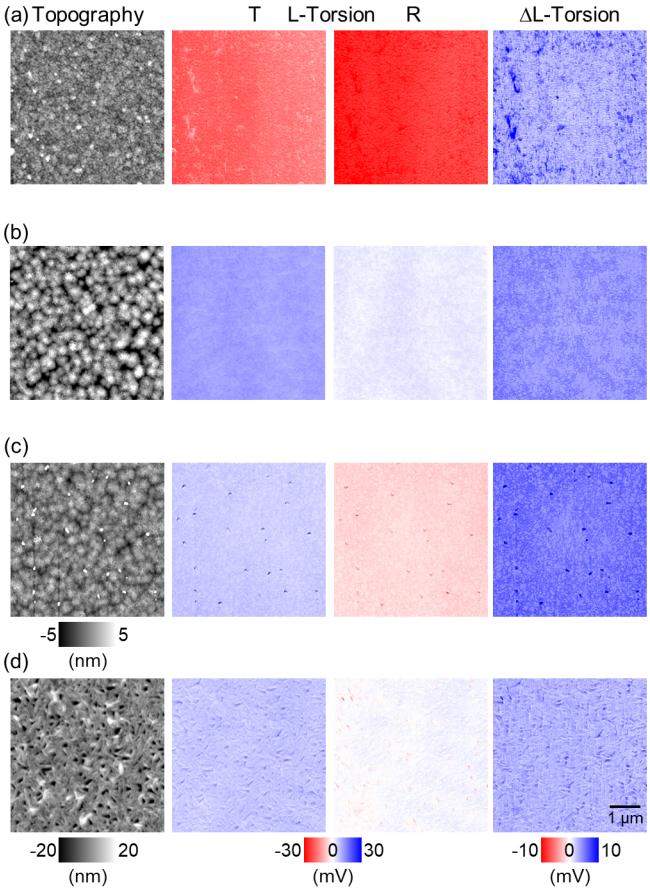

图 S5. 扫描角度为 90° 时，图 4 中铁电氧化物和聚合物薄膜方框图案化畴的形貌、横向扭转图像及横向扭转差异（Δ）图：(a) 50 nm 锆钛酸铅（20/80），(b) 50 nm 锆钛酸铅（52:48），(c) 100 nm 锆钛酸铅（52:48），以及 (d) 20 nm 聚偏氟乙烯-三氟乙烯共聚物。横向扭转与压电力显微镜测量同步进行。

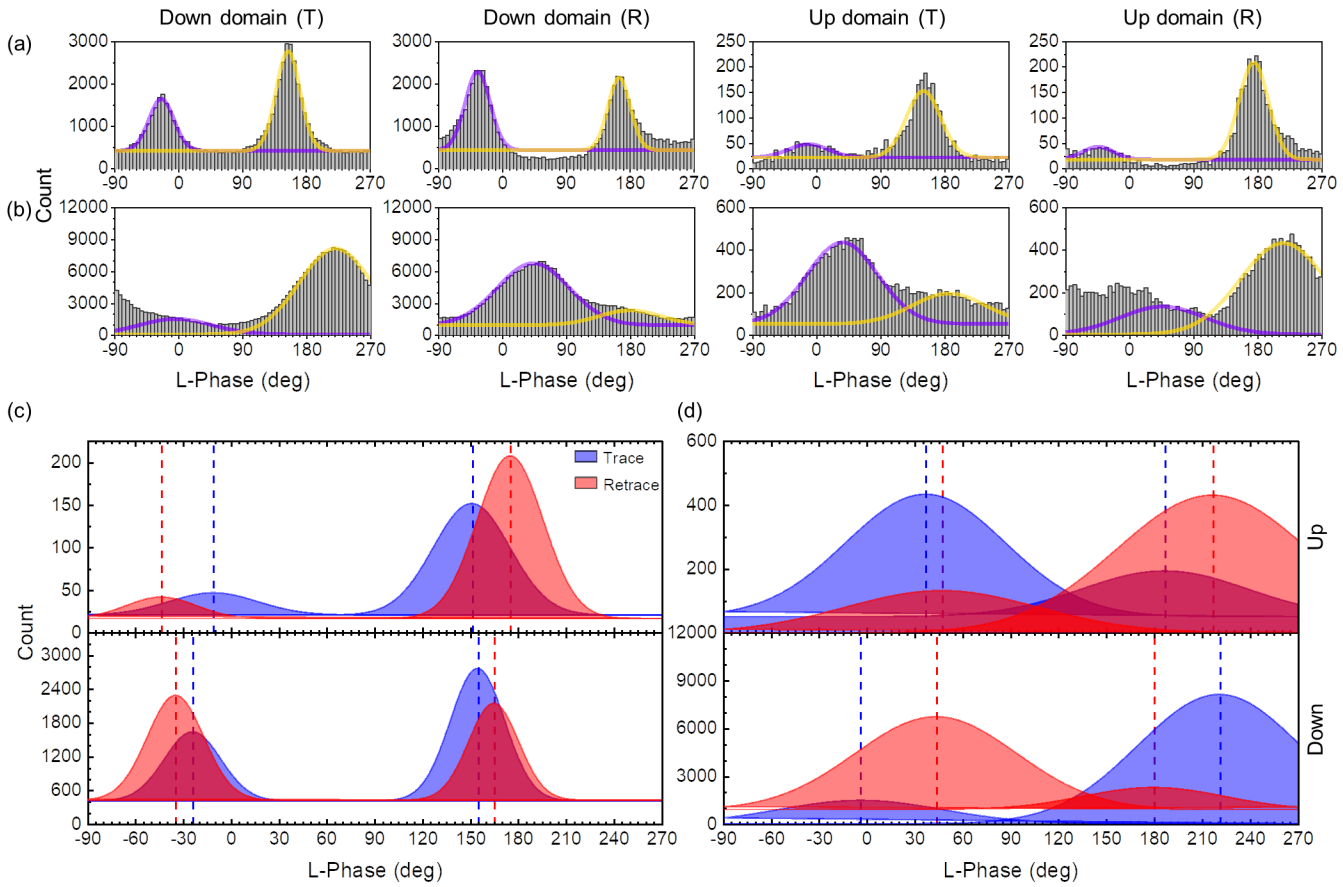

图 S6. 图 4 中 100 nm 锆钛酸铅（52:48）（a）和 20 nm 聚偏氟乙烯-三氟乙烯共聚物（b）薄膜在正向扫描（T）和反向扫描（R）中向上和向下畴的横向压电力显微镜相位直方图及计算得到的高斯拟合。所有图的分箱宽度均为 5。根据 100 nm 锆钛酸铅（52:48）（c）和 20 nm 聚偏氟乙烯-三氟乙烯共聚物（d）薄膜中向上和向下畴的横向压电力显微镜相位直方图计算得到的高斯拟合。

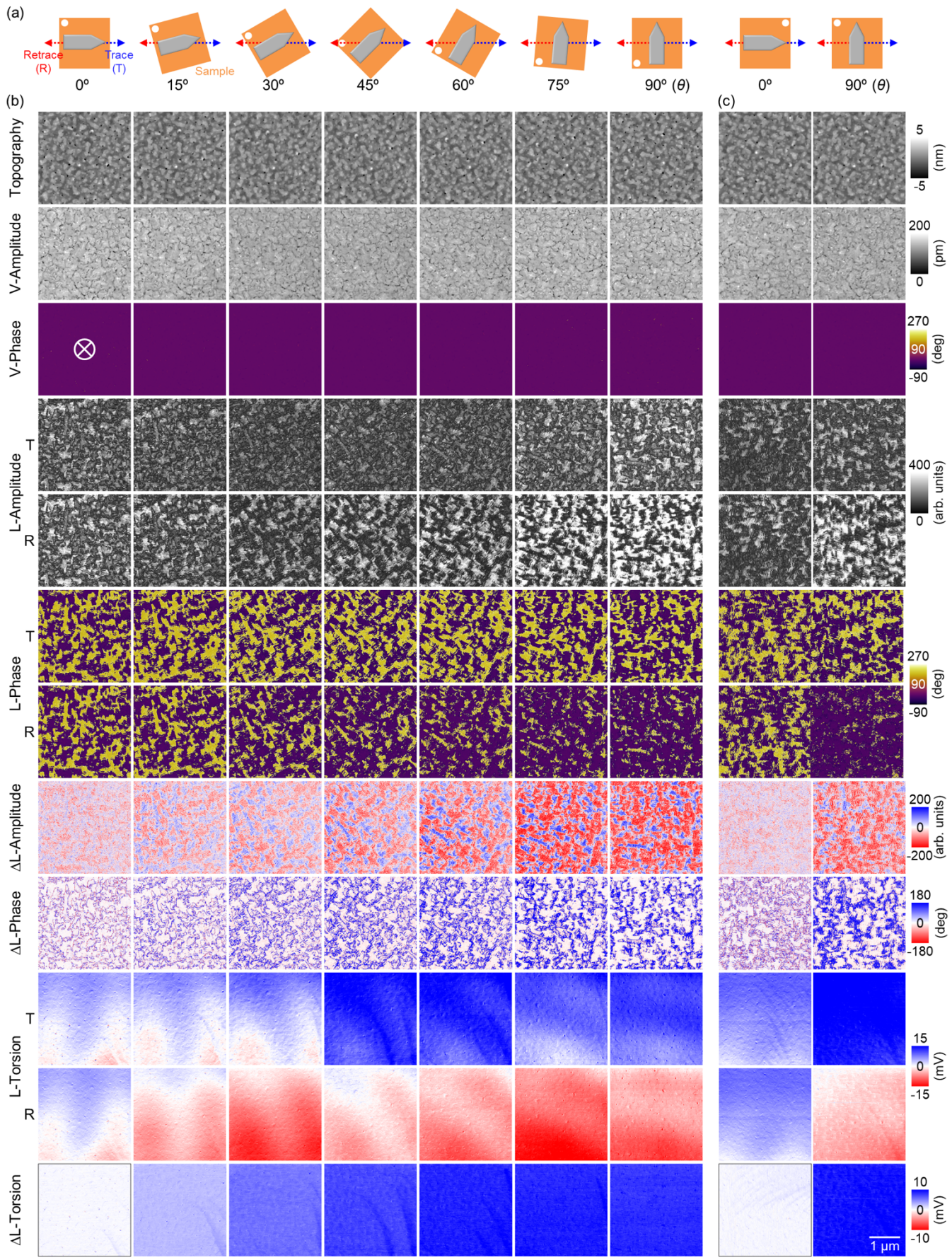

图 S7. (a) 压电力显微镜扫描中悬臂运动的示意图，其中悬臂在正向扫描 (T) 和反向扫描 (R) 中的快速扫描方向以蓝色和红色虚线箭头表示，作为扫描角度 (θ) 的函数。(b) 样品旋转 (ϕ) 顺时针 90° 前，BFO 薄膜上的形貌、垂直压电力显微镜、横向压电力显微镜和横向扭转图像，以及横向压电力显微镜与横向扭转的差异 (Δ) 图；(c) 样品旋转 (ϕ) 顺时针 90° 后的对应图像和差异图，均作为扫描角度 (θ) 的函数。差异图通过相减计算得出

反向扫描成像　　来自正扫图像（T-R）的图像。横向扭转与压电力显微镜同步测量。

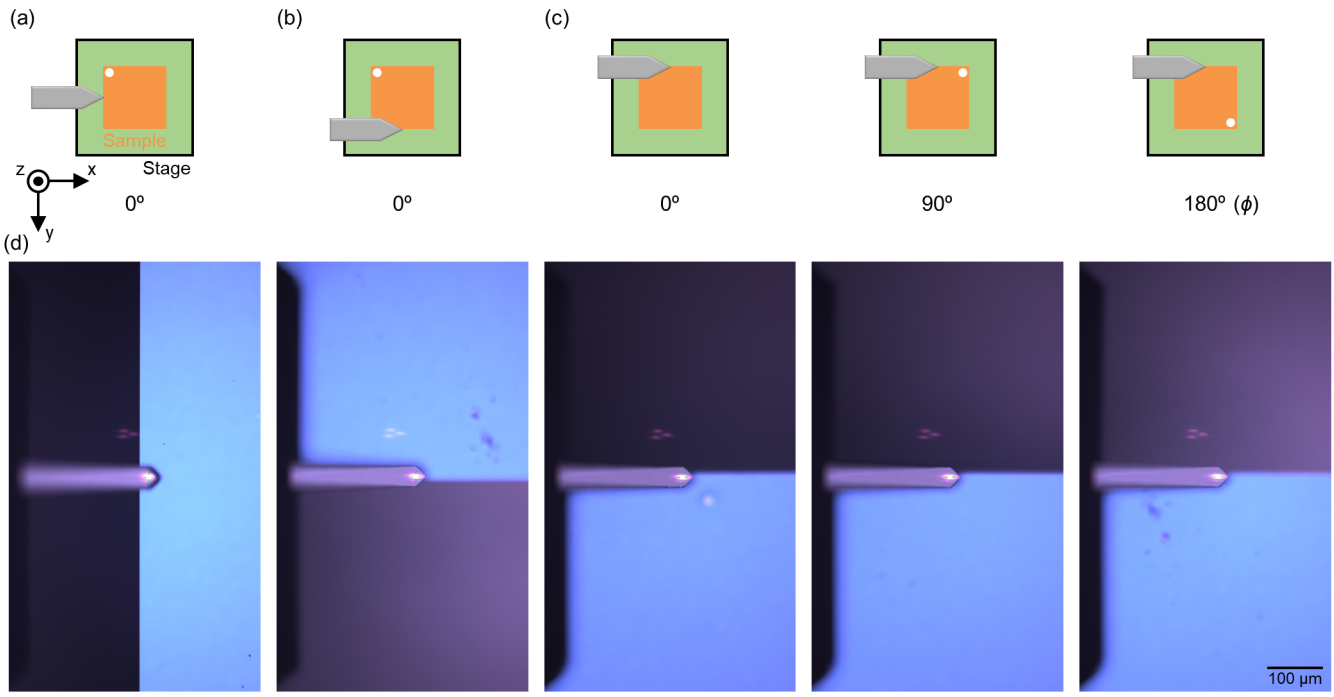

图 S8. 压电力显微镜扫描中悬臂梁与样品的示意图：随着样品旋转角（ϕ）变化，悬臂梁长轴与样品边缘垂直（a）或平行（b）和（c）。（d）图6中悬臂梁与样品对应的光学显微镜图像。

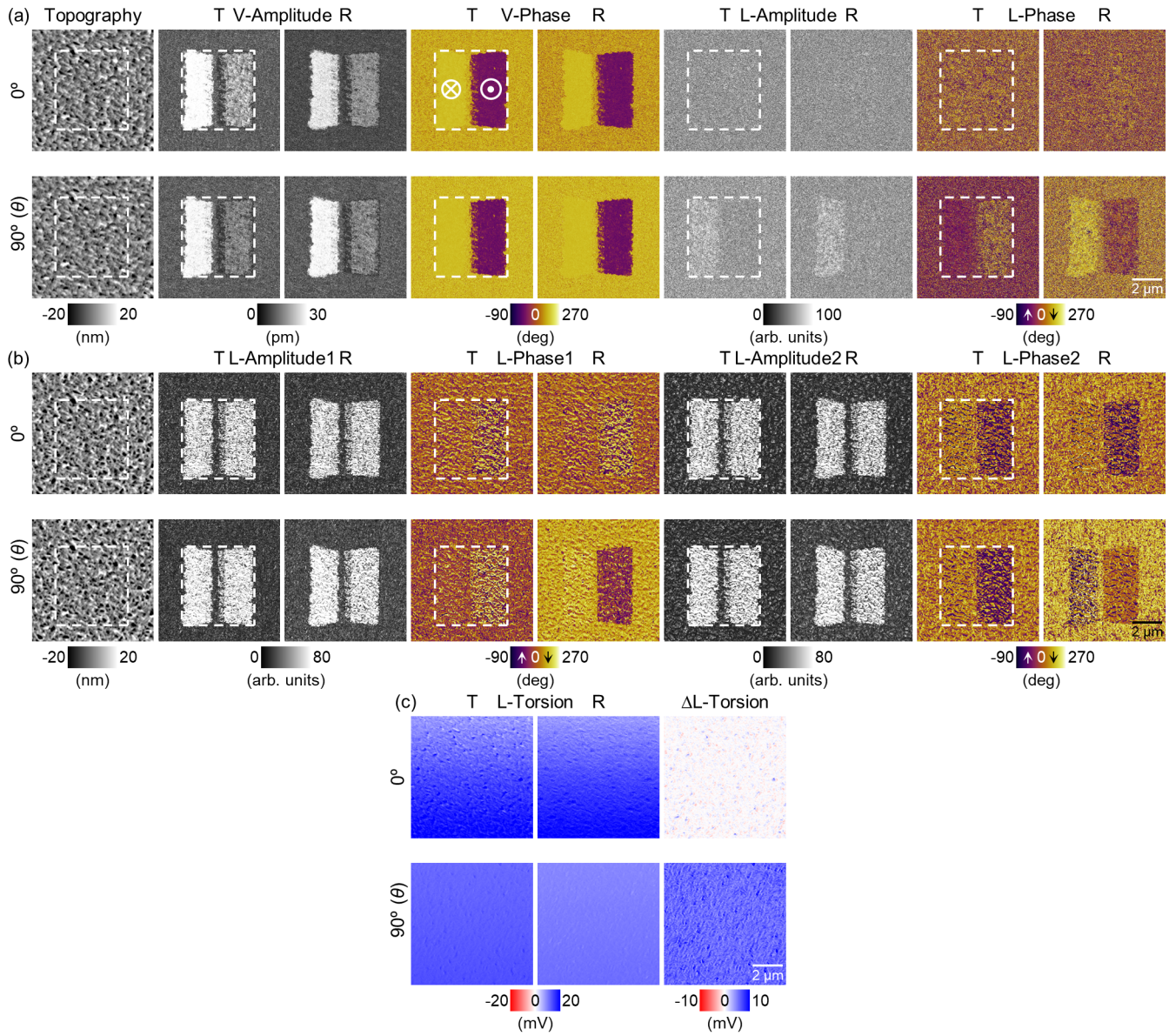

图 S9. 通过非共振压电力显微镜模式 (a) 和双频共振跟踪横向压电力显微镜模式 (b) 获得的形貌、垂直压电力显微镜和横向压电力显微镜图像；扫描角度 (θ) 分别为 0° 和 90°，扫描对象为采用与图1相同工艺制备的 P(VDF-TrFE)薄膜中的向上和向下极化畴（以虚线框标示）。(c) 扫描角度 (θ) 为 0° 和 90° 时获得的横向扭转图像，以及通过从正向扫描图像中减去反向扫描图像（T-R）计算得到的相应差异 (Δ) 映射图。横向扭转与非共振压电力显微镜同步测量。