文章编号: 1007-4252(2025)02-0121-09 DOI: 10.20027/j.gncq.2025.0015 CSTR: 32180.14.j.gncq.2025.0015

钛酸钡铁电隧道结的极化翻转动力学研究

张占凤[1], 邓曹状[1], 王辰熙[2], 朱敏敏[1,2,*]
(1. 福州大学先进制造学院, 晋江 362200; 2. 福州大学物理与信息工程学院, 福州 350108)

摘要: 本文针对冯·诺依曼架构中存在的处理器与存储器间数据传输瓶颈所导致的高能耗和低效率问题, 探索了基于铁电隧道结的神经形态计算解决方案。铁电隧道结因其独特的极化翻转特性而具备神经形态计算所需的物理基础, 其极化翻转的统计行为直接决定器件性能。本文以钛酸钡铁电隧道结存储器为模型, 采用结合非均匀场机制理论的自研相场模拟技术, 重点探讨了机械边界条件对极化翻转统计行为的调控机制。研究结果表明, 由于上下电极材料与铁电层之间的晶格失配所产生的非均匀应力分布, 会显著调制铁电层的极化翻转特性: 铁电隧道结相比上表面无夹持的原生薄膜, 表现出更快的极化翻转速度和更高的非均匀性, 显著提升了神经形态计算性能。我们的研究表明, 非均匀应力对铁电隧道结在神经形态计算中的应用具有积极影响。这一发现对优化神经形态计算器件的性能具有重要意义。

关键词: 铁电隧道结; 相场模拟; 非均匀场机理; 非均匀应力
中图分类号: TN384 **文献标志码:** A

Research on polarization switching dynamics in barium titanate ferroelectric tunnel junctions

ZHANG Zhan-feng[1], DENG Cao-zhuang[1], WANG Chen-xi[2], ZHU Min-min[1,2,*]
(1. College of Advanced Manufacturing, Fuzhou University, Jinjiang 362200, China; 2. College of Physics and Information Engineering, Fuzhou University, Fuzhou 350108, China)

Abstract: To address the high energy consumption and low efficiency caused by the data transfer bottleneck between processors and memory in von Neumann architectures, this study explores a neuromorphic computing solution based on ferroelectric tunnel junctions (FTJs). FTJs exhibit the essential physical characteristics for neuromorphic computing due to their unique polarization switching behavior, where the statistical properties of polarization reversal directly determine device performance. Using barium titanate-based FTJ memory as a model system and through self-developed phase-field simulations combined with non-uniform field theory, this work investigates the regulatory effects of mechanical

收稿日期: 2025−02−20; **修订日期:** 2025−03−26
基金项目: 福建省科技厅对外合作重点项目 (2022I0006).
作者简介: 张占凤 (2000—), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为负电容器件的应用 (E-mail: 228527310@fzu.edu.cn).
通信作者: 朱敏敏 (1980—), 男, 博士, 教授, 主要研究方向为半导体微纳电光器件与集成电路 (E-mail: mmzhu@fzu.edu.cn).

boundary conditions on polarization switching statistics. The results demonstrate that the non-uniform stress distribution induced by lattice mismatch between the top/bottom electrodes and the ferroelectric layer significantly modulates the polarization switching dynamics: FTJs exhibit faster polarization switching speeds and higher inhomogeneity compared to unclamped pristine ferroelectric thin films, leading to substantially enhanced neuromorphic computing performance. This study confirms the beneficial role of non-uniform stress engineering in improving FTJ-based neuromorphic computing applications. This finding is of great significance for optimizing the performance of neural morphological computing devices.

Key words: ferroelectric tunnel junction; phase-field simulation; non-uniform field mechanism; non-uniform stress

0 引言

在近年来，人工智能得到了快速发展，对计算系统提出了高速运行与低功耗的双重要求[1,2]。传统的冯·诺依曼微电子器件架构存在固有的局限性，这是由于处理器计算和存储器之间不可避免地要进行大量的数据传输，造成了大量的能耗和较低的运行速度。因此，亟需发展具备超高速、低功耗、非易失性及多阻态存储特性的新一代器件，并进一步突破冯·诺依曼架构的限制，推动神经形态计算的创新应用[3]。

铁电存储器因其非易失性、低功耗、快速读写以及多阻态存储特性，成为实现神经形态计算和存内计算的理想候选器件之一。铁电存储器主要分为三种：铁电电容存储、铁电场效应管（FeFETs）和铁电隧道结（FTJ）[4-7]。目前商用的小型铁电存储器主要基于铁电电容存储原理，但其固有的破坏性电荷读取机制制约了器件的大范围应用。相比之下，铁电隧道结的存储机制是电压写入和电压读出，克服了铁电电容存储的破坏性电荷读取缺陷，这使得它成为下一代高性能的存储器的有力竞争者。因此，探究影响 FTJ 性能变化的因素变得极为重要。FTJ 的性能受包括电极材料的选择、界面结构的特点、以及外部环境的约束等多种边界条件的显著影响[8]。这些边界条件不仅可能导致 FTJ 的电导率、隧穿电阻以及开关比等关键参数的显著波动，还可能影响其稳定性和可靠性。

相较于普通薄膜，FTJ 具有独特的边界条件：其上下表面均被电极紧密夹持。由于电极材料与铁电薄膜材料之间的晶格参数存在差异，这种结构特性会使得 FTJ 的上下表面产生晶格畸变应力。这些应力作用进一步导致了 FTJ 内部应力分布的非均匀性，这种非均匀性在神经形态计算领域中扮演着重要的角色：它能为神经形态计算带来独特的优势，如增强的学习能力、更高的计算效率或更低的能耗，同时也可能带来一些挑战[9]。因此，深入探究和理解 FTJ 的非均匀性特性，对于推动神经形态计算技术的发展至关重要。

极化翻转行为是表征神经形态计算的重要物理特性，其统计特性可通过极化翻转动力学来揭示[10]。为了研究这一特性，人们已提出多种理论模型。其中，最早 Kolmogorov-Avrami-Ishibashi（KAI）模型有效地描述了单晶中的翻转动力学过程，适用于单晶铁电体和外延铁电薄膜的极化反转动力学过程[11]。随后，为了更准确地分析含有缺陷材料的开关动力学，研究人员引入了成核有限开关（NLS）模型，该模型结合了成核统计的原理，适用于极化反转过程中的非线性行为[12]。Preisach 模型将复杂滞回行为分解为大量“迟滞单位”（又称“Preisach 单元”）的叠加效应，这一模型特别适用于对材料磁滞特性的精确建模。非均匀场机制（IFM）主要阐述了在电场的作用下，材料内部的畴结构发生转变，进而驱动畴壁发生动态迁移的动力学过程[13,14]。相较于其他几种模型，IFM 模型具有物理意义清晰明确且能够有效表征非理想系统的特性，并且在畴结构演化、畴翻转机理的阐释、材料性能优化等关键问题上展现出独特优势[15]，因而成为本研究最为合适的选择。

本文选用钛酸钡（$BaTiO_3$, BTO）作为模型铁电体系，该材料因其独特的综合性能而备受关注：

优异的铁电性能、高电光系数与介电常数、显著的压电响应、混沌行为特征, 同时具备深厚的研究积累和持续的发展潜力[16]。这些特性使 BTO 成为神经形态计算领域极具研究价值的材料体系。本研究采用先进的相场模拟技术, 通过设计多样化的边界条件, 系统比较了常规铁电薄膜与 FTJ 在极化翻转行为上的显著差异[17]。为深入探究这些差异背后的物理机制, 本研究创新性地将相场模型与 IFM 相结合。这一方法使我们能够深入分析多种物理过程对极化翻转动力学的协同作用机制, 从而构建更为完善的铁电材料极化反转理论框架, 为提升铁电器件性能、推动神经形态计算等领域的发展提供理论依据。研究结果表明, 复杂机械边界条件引入的内应力显著增强了 FTJ 的非均匀性, 有效降低了极化翻转时间和极化翻转的能量势垒。本研究通过相场模拟与 IFM 相结合的方法, 揭示了钛酸钡 FTJ 的极化翻转行为在复杂机械边界条件下的独特优势, 为铁电器件性能优化及神经形态计算领域的发展提供了重要的理论支撑。

1　相场模拟模型

铁电极化强度是决定未来存储器性能的关键因素, 而非均匀应力场对铁电材料极化状态的调控机制具有重要作用。为了开展这方面的研究, 本文建立了铁电隧道结模型 Pt/BTO/$La_{0.6}7Sr_{0.33}MnO_3$ (LSMO), 模型的上、下表面分别施加了不同的晶格失配应力。为了更深入地研究非均匀应力场的多物理场耦合效应, 本文以原生 BTO 薄膜为对照组, 深入探究了极化状态在非均匀应力场作用下的变化, 从而更全面地了解其对器件存储性能的影响。相场模型基于热力学原理, 用序参量描述体系的物理演化过程。在此过程中, 需要考虑包括朗道(f_{L})、弹性(f_{elas})、表面去极化(f_{dep})、偶极子相互作用(f_{dip})、梯度(f_{grad})和电场(f_{elec})等自由能密度在内的各种热力学自由能的影响。总自由能(F)如下式所示[18]:

$$F=\iiint\left(f_{\mathrm{L}}+f_{\mathrm{elas}}+f_{\mathrm{dep}}+f_{\mathrm{dip}}+f_{\mathrm{grad}}+f_{\mathrm{elec}}\right)dV \tag{1}$$

公式(1)中的能量密度由爱因斯坦符号法表示, 朗道自由能量密度由下式表示:

$$\begin{aligned}f_{\mathrm{L}}=&\alpha_1\left(P_1^2+P_2^2+P_3^2\right)+\alpha_{11}\left(P_1^4+P_2^4+P_3^4\right)+\\&\alpha_{12}\left(P_1^2P_2^2+P_1^2P_3^2+P_2^2P_3^2\right)+\alpha_{111}\left(P_1^6+P_2^6+P_3^6\right)+\\&\alpha_{112}\left[P_1^4\left(P_2^2+P_3^2\right)+P_2^4\left(P_1^2+P_3^2\right)+P_3^4\left(P_1^2+P_2^2\right)\right]+\\&\alpha_{123}\left(P_1^2P_2^2P_3^2\right)+\alpha_{1111}\left(P_1^8+P_2^8+P_3^8\right)+\alpha_{1112}\left[P_1^6\left(P_2^2+P_3^2\right)+\right.\\&\left.P_2^6\left(P_1^2+P_3^2\right)+P_3^6\left(P_1^2+P_2^2\right)\right]+\alpha_{1122}\left(P_1^4P_2^4+P_1^4P_3^4+P_2^4P_3^4\right)+\\&\alpha_{1123}\left(P_1^4P_2^2P_3^2+P_1^2P_2^4P_3^2+P_1^2P_2^2P_3^4\right)\end{aligned} \tag{2}$$

公式(2)中, P_i (i = 1,2,3) 为各方向的自发极化, α_1、α_{11}、α_{12}、α_{111}、α_{112}、α_{123}、α_{1111}、α_{1112}、α_{1122}、α_{1123} 为表征介电刚度的朗道展开系数。弹性能密度为:

$$f_{\mathrm{elas}}=\frac{1}{2}C_{ijkl}e_{ij}e_{kl}=\frac{1}{2}C_{ijkl}\left(\varepsilon_{ij}-\varepsilon_{ij}^0\right)\left(\varepsilon_{kl}-\varepsilon_{kl}^0\right) \tag{3}$$

其中 C_{ijkl} 为四阶弹性常数张量; e_{ij} 和 ε_{ij} 分别代表弹性应变和总应变; ε_{ij}^0 为自发应变, 其形式表现为: $\varepsilon_{ij}^0=Q_{ijkl}P_kP_l$, 其中 Q_{ijkl} 是电致伸缩系数张量。表面去极化能密度为:

$$f_{\mathrm{dep}}=-\frac{1}{2}E_i^{\mathrm{dep}}P_i \tag{4}$$

其中 $E_i^{dep}=-\bar{P}_i/\kappa_{ii}$ 为未补偿的表面电荷诱导的去极化场, $\bar{P}_i$ 为各表面的平均净极化分量, κ_{ii} 表示材料的介电常数分量。偶极子相互作用能为:

$$f_{\mathrm{dip}}=-\frac{1}{2}E_i^dP_i \tag{5}$$

其中 E_i^d 为偶极子相互作用电场, 通过求解静电平衡方程中的电势 φ 而得到:

$$D_{i,i}=\varepsilon_0\kappa_{ii}\frac{\partial^2\varphi}{\partial x_i^2}+\frac{\partial P_i}{\partial x_i} \tag{6}$$

其中 x_i (i = 1, 2, 3) 为笛卡尔坐标系中各坐标轴的单位矢量, 电位移矢量的偏微分表示为 $D_{i,i}=\partial D_i/\partial x_i$, 极化的偏微分表示为 $P_{i,i}=\partial P_i/\partial x_i$ (下文将会使用相同的表达方式), 并且真空介电常数为 $\varepsilon_0=8.85\times10^{-12}F/m$, κ_{ii} 和上文一样为相对介电常数。梯度能为:

$$\begin{aligned}f_{\mathrm{grad}}=&\frac{1}{2}G_{11}\left(P_{1,1}^2+P_{2,2}^2+P_{3,3}^2\right)+\\&G_{12}\left(P_{1,1}P_{2,2}+P_{2,2}P_{3,3}+P_{3,3}P_{1,1}\right)+\\&\frac{1}{2}G_{44}\left[\left(P_{1,2}+P_{2,1}\right)^2+\left(P_{2,3}+P_{3,2}\right)^2+\left(P_{1,3}+P_{3,1}\right)^2\right]+\\&\frac{1}{2}G'_{44}\left[\left(P_{1,2}-P_{2,1}\right)^2+\left(P_{2,3}-P_{3,2}\right)^2+\left(P_{1,3}-P_{3,1}\right)^2\right]\end{aligned} \tag{7}$$

其中 G_{11}, G_{12}, G_{44}, G'_{44} 为梯度能参数, 表征畴壁的特征。

由于上下表面均为无应变约束条件, 但电极材料与 BTO 的晶格参数差异会引入初始晶格失配应

力。在应变弛豫过程中，系统通过畴结构演化达到平衡态，最终形成稳定的畴分布。这一过程本质上是初始晶格失配应力与应变弛豫竞争的结果。模拟过程是在包含随机热噪声的条件下进行的，这种随机热噪声充当了模拟环境中的一个重要因素。求解含时(t)的金兹堡-朗道(TDGL)方程[18]，得到平衡时的极化态 P:

$$\frac{\partial P_i(\vec{x},t)}{\partial t}=-L\frac{\delta F(\vec{x})}{\delta P_i(\vec{x},t)}(i=1,2,3) \tag{8}$$

其中，F 是上面提到的总自由能，它是描述系统能量状态的一个关键物理量；L 是模型动力学参数，表征系统随时间演化的动态特性。为了求解时间依赖的演化过程，我们运用显式二阶后向差分(Backward Differentiation Formula, 简称 BDF)方法和二阶 Adams-Bashforth(AB)方法进行时间的离散化处理。

2 铁电隧道结仿真与分析

为了探讨双夹持机械边界条件对极化翻转行为的影响，我们利用相场模型对在平衡状态下生长的 $BaTiO_3$ 薄膜的畴结构进行了模拟。如表 1 所示，所有的模型参数都由文献提取，以确保模拟结果的准确性和可靠性[18]。针对原生薄膜的特定情况，我们特别采用了如式(9)所示的无应变底部边界条件和无应力顶部边界条件，以更贴近实际薄膜的应力状态：

$$\begin{cases} u_i|_{z=z_{bot}}=u_i^A+u_i^B=0 & (\text{下表面}) \\ \delta\sigma_{i3}|_{z=z_{top}}=C_{i3kl}\left(u_{k,l}-\varepsilon_{kl}^0\right)=0 & (\text{上表面}) \end{cases} \tag{9}$$

其中 i, j, k, l = 1, 2, 3, z 为沿薄膜厚度方向的坐标，u 为位移，u_i^A 与 u_i^B 分别为机械平衡条件($C_{ijkl}u_{k,lj}=C_{ijkl}\varepsilon_{kl,j}^0$)下偏微分方程的特解与通解，$\delta\sigma_{i3}$ 为面外非均匀应力。在此基础上，进一步推进了对非原生薄膜的模拟工作，设定 FTJ 的边界条件为上下表面均为如式(10)所示的无应变的双夹持状态，并分别加入因不同电极材料所导致的晶格失配效应：

$$u_i|_{z=z_{bot},z_{top}}=u_i^A+u_i^B=u_{mis,i}, \tag{10}$$

其中 $u_{mis,i}$ 为晶格失配应变导致的位移，由下式(11)与(12)算得：

$$\widehat{u}_{mis,i}=\frac{I}{\xi_j}\widehat{\varepsilon}_{ij}^{mis} \tag{11}$$

$$u_{mis,i}=\mathcal{F}^{-1}(\widehat{u}_{mis,i}), \tag{12}$$

表 1 相场模拟的各物理参数[18]

Table1 The physical parameters for phase-field simulation.

参数		数值
自发极化	P_0	0.26 Cm^{-2}
动力学参数	L	3×10^{-2} $C^2m^{-2}N^{-1}s$
朗道自由能展开参数	α_1	$4.124\times(T-388)\times10^5$ $C^{-2}m^2N$
	α_{11}	-209.7×10^6 $C^{-4}m^6N$
	α_{12}	797.4×10^7 $C^{-4}m^6N$
	α_{111}	129.4×10^7 $C^{-6}m^{10}N$
	α_{112}	-195.0×10^7 $C^{-6}m^{10}N$
	α_{123}	-250.0×10^7 $C^{-6}m^{10}N$
	α_{1111}	386.3×10^8 $C^{-8}m^{14}N$
	α_{1112}	252.9×10^8 $C^{-8}m^{14}N$
	α_{1122}	163.7×10^8 $C^{-8}m^{14}N$
	α_{1123}	136.7×10^8 $C^{-8}m^{14}N$
电致伸缩系数	Q_{11}	0.10 $C^{-1}m^2$
	Q_{12}	-0.034 $C^{-1}m^2$
	Q_{44}	0.029 $C^{-1}m^2$
弹性系数	C_{11}	178×10^9 Nm^{-2}
	C_{12}	96.4×10^9 Nm^{-2}
	C_{44}	122.0×10^9 Nm^{-2}
梯度能参数	G_{11}	1.45×10^{-11} $C^{-2}m^4N$
	G_{12}	0
	G_{44}	7.26×10^{-12} $C^{-2}m^4N$
	G'_{44}	7.26×10^{-12} $C^{-2}m^4N$

其中 $I=\sqrt{-1}$，ξ_j 为傅里叶空间中的倒格矢，$\widehat{u}_{mis,i}$ 为 $u_{mis,i}$ 的傅里叶变换，$\widehat{\varepsilon}_{ij}^{mis}$ 为晶格失配应变 ε_{ij}^{mis} 的傅里叶变换，$\mathcal{F}^{-1}$ 为逆傅里叶变换操作。

假设晶格失配在薄膜具有面内各项同性，则 BTO 上下表面的晶格失配应变可按照式(13)计算[19]：

$$\varepsilon^{\text{mis}}=\frac{a_{\text{BTO}}-a_{\text{elec}}}{a_{\text{elec}}} \tag{13}$$

其中 a_{BTO} 为 BTO 的晶格参数，a_{elec} 为 Pt 及 LSMO 的晶格参数。面心立方结构 Pt 的晶格参数为 3.923Å[20]，赝立方相 LSMO 的晶格参数为 3.87Å[21]，四方相 BTO 晶格参数为 3.992Å[22]，由此计算得 BTO 上表面晶格失配应变为 1.76%，下表面为−3%。

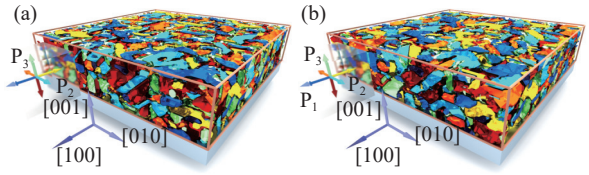

图 1　(a) 原生薄膜的畴结构; (b) FTJ 的畴结构

Fig. 1 (a) Domain structure of as-grown film. (b) Domain structure of FTJ.

以此为基础探究了 FTJ 上下表面由于晶格失配应力作用而形成的畴结构。如图 1(a) 和 (b) 所示, 原生薄膜和 FTJ 起始于完全相同的随机热扰动状态, 然而时间演化至稳定态后, 原生薄膜的 c 畴($P_1 = 0$, $P_2 = 0$, $P_3 \neq 0$) 占比为 45.8%, FTJ 的 c 畴占比为 30.6%, 表明不同电极材料的夹持作用对畴结构有显著影响。

边界条件除了对畴结构产生影响以外, 对器件内部局部电场的分布也有显著影响, 而局部电场的改变会影响器件性能。局部电场的产生会受到电疲劳效应、缺陷和材料的不均匀性等因素对影响。这些因素能够引发一系列复杂的反应。例如, 电疲劳会导致介电死亡层的形成, 因为这些层可能在部分失去活性的同时, 仍保留有一定的铁电特性, 因此产生的影响错综复杂; 此外, 疲劳还会改变极化翻转时间的统计分布特性; 另一方面, 缺陷的存在往往会减小这些分布值, 而这些缺陷之间的相互作用, 既可能促进也可能阻碍极化开关过程, 从而使系统行为的复杂性进一步升级。为了规避这些不同影响所带来的不确定性, 我们聚焦于理解非均匀性对系统行为产生影响的机制。

在图 2 中, 可以观察到原生薄膜和 FTJ 的电滞 (P-E) 回线的对比。可以看出, 当受到非均匀应力作用时, 极化强度降低, 滞回曲线往里收缩, 翻转时曲线曲率降低。这表明不同电极材料的夹持作用对极化翻转行为有显著影响。除此之外, 在图 2 中还观测到微弱的束腰现象, 其产生的原因在于不同畴结构具有不同的极化翻转电场: 本文所研究的 BTO 为四方相结构, 具有 90 度和 180 度畴的极化翻转, 二者拥有不同的能量势垒, 因此在极化翻转过程中具有不同的翻转电场; 本文采取单晶 BTO 薄膜为研究对象, 其翻转行为的均一性比多晶样品高, 因此翻转电场呈现对应 90 度畴与 180 度畴翻转的二值分布, 即表现为宏观电滞回线的束腰现象。

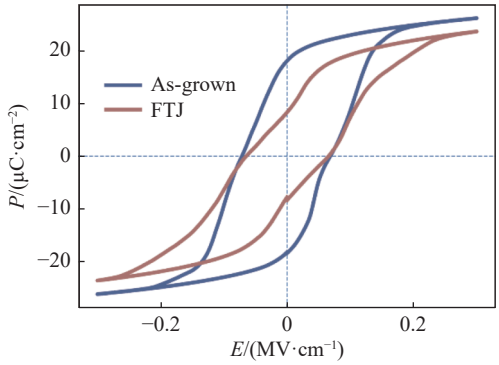

图 2　原生薄膜和 FTJ 的 P-E 曲线

Fig. 2 The P-E curve of as-grown film and FTJ.

而多晶情况下翻转电场弥散分布于二者之间, 致使束腰现象消失。

相场模拟已揭示了非均匀应力对系统的影响, 但非均匀性的具体作用机制(单个因素的作用机理及非均匀性对系统属性的影响)仍需深入分析。其中, 翻转动力学作为受非均匀性影响的关键特性, 值得重点关注。在研究局部电场分布的背景下, 我们采用非均匀场机制 IFM 作为相场模拟框架内研究翻转动力学的方法。具体而言, 将 BTO 的预极化方向统一设置为完全向下, 进而对比分析有、无应力条件下极化随时间和电场的变化规律。如图 3(a) 所示, 在 0-1.5 MV/cm 的电场范围内, 无应力 BTO 薄膜的极化变化 ΔP 随着时间的逐渐增加而慢慢上升, 在 10^{-7} s 以后达到稳定值。如图 3(b) 所示, 在 0-0.27 μs 的极化时间范围内, BTO 薄膜极化 ΔP 缓慢增长, 最终达到稳定值。进一步对器件的上下表面施加不同应力作用, 可以模拟得出相同的上升趋势, 但极化稳定值相比无应力情况有所降低, 并且上升的速度较慢, 如图 3(c) 和 (d) 所示。

对图 3(b)和(d)中的曲线作一阶求导, 即得到图 4(a) 和 (b) 中的曲线。我们对极化变化值进行了深入分析, 从图 4(a) 和 (b) 中提取导数峰值所对应的电场值(记为 E_{max}), 再使用 E_{max} 对图 4(a) 和 (b) 进行归一化处理, 即得到图 4(c) 和 (d), 可以发现这些导数的变化重合于一条高斯型主曲线。这表明, 数据符合下式(14)的描述:

$$\frac{E}{\Delta P_{max}} \cdot \frac{\partial \Delta P_{max}}{\partial E} = \Phi\left(\frac{E}{E_{max}(t)}\right) \tag{14}$$

其中, E 为外加电场, ΔP_{max} 为极化翻转的最大值, Φ 为高斯型主曲线函数。这一现象有力地证明了将

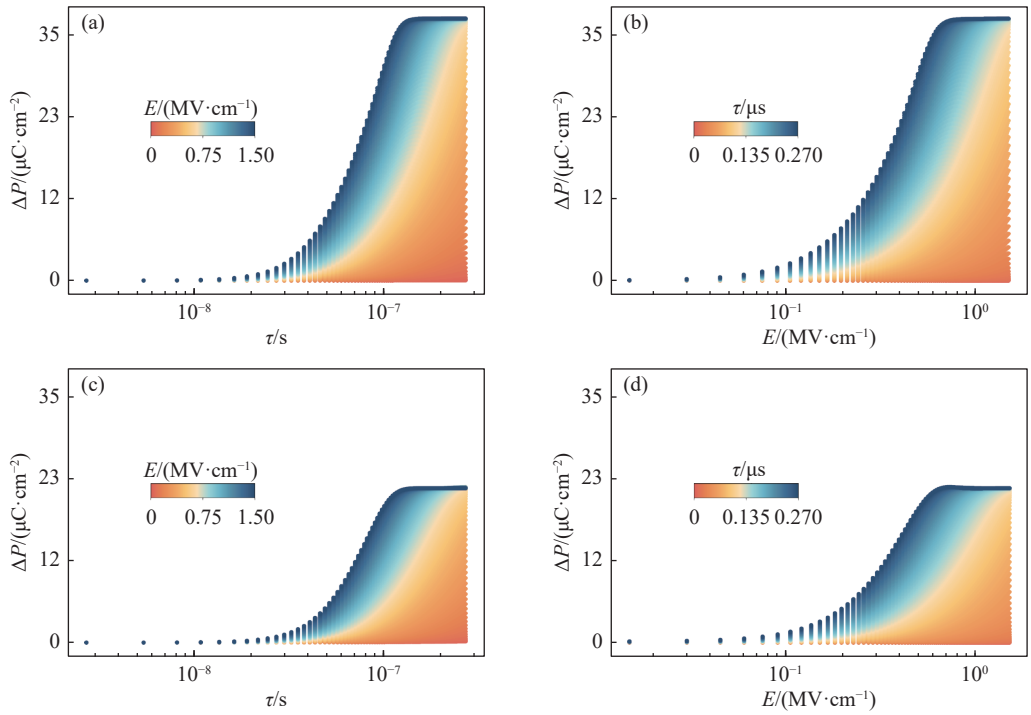

图 3 (a, b) 原生薄膜在不同时间和不同电场下极化值的变化; (c, d) FTJ 在不同时间和不同电场下极化值的变化

Fig. 3 (a, b) The changes in polarization values of as-grown film under different time durations and electric fields. (c, d) The changes in polarization values of FTJ under different time durations and electric fields.

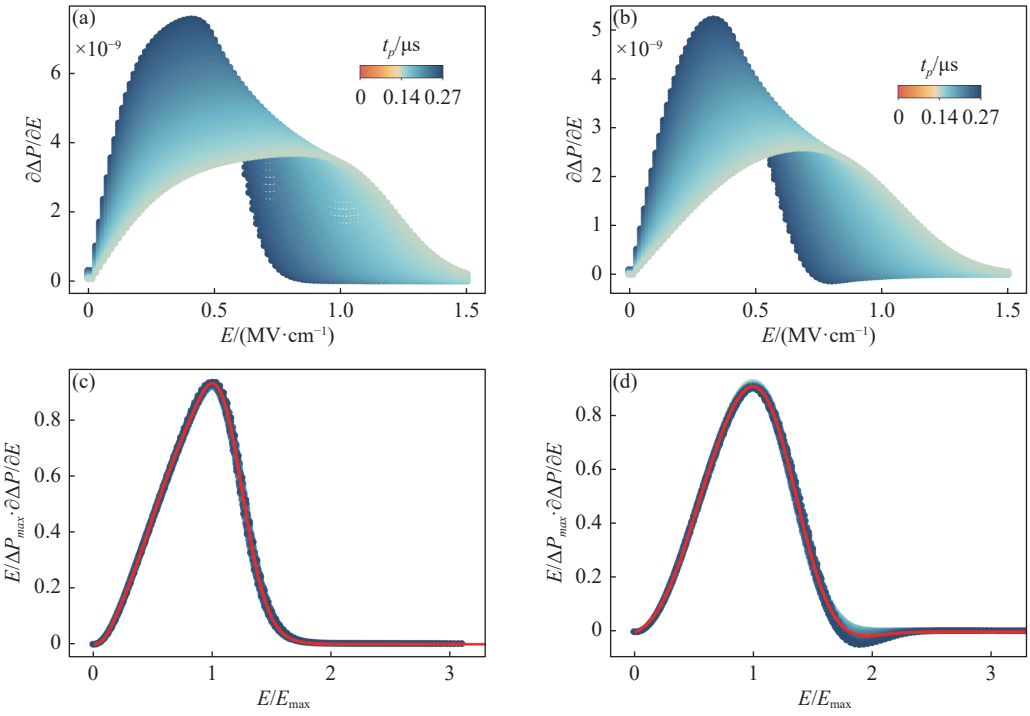

图 4 原生薄膜(a)和 FTJ(b)极化的一阶导数; 原生薄膜(a)和 FTJ(b)的主曲线重叠

Fig. 4 The first derivative of polarization of as-grown film (a) and FTJ (b). The master curve overlap of as-grown film (c) and FTJ (d).

IFM 技术应用于此类数据集的有效性和可行性。可以发现, FTJ 的非均匀应力减弱了高斯型主曲线的强度, 且增加了其分布宽度, 其对高斯型主曲线的影响将直接反映在极化翻转时间与局域电场的统计分布中。

综上所述, 通过对极化变化值进行电场归一化求导分析, 我们不仅验证了 IFM 在此类研究中的适用性, 还深入揭示了非均匀应力作用对 BTO 薄膜极化特性的影响机制。我们进一步从图 4(a) 和 (b) 提取了导数峰值所对应的电场值 $E_{\max}$, 并利用下式(15)所提供的经验函数对$E_{\max}(t)$进行拟合:

$$E_{\max}(t)=\frac{E_0}{ln(t/\tau_0)^{\beta}} \tag{15}$$

式中τ_0为表征系统极化翻转的难易程度的特征极化翻转时间, 其物理意义为畴壁在外电场作用下摆脱钉扎效应所需的时间; E_0 和β为与系统特性相关的拟合参数。拟合的结果如图 5(a) 和 (b) 所示, 它直观展示了导数峰值电场与经验函数之间的良好匹配关系。

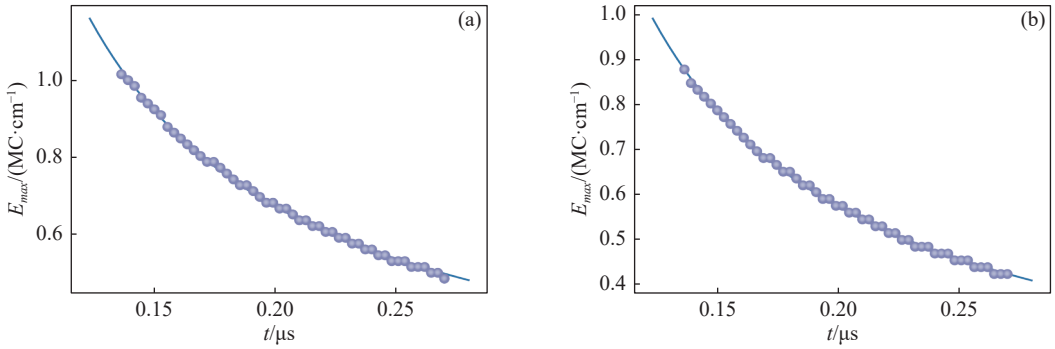

图 5　原生薄膜 (a) 和 FTJ(b) 的 $E_{\max}(t)$的拟合结果

Fig. 5　The fitting result of $E_{max}(t)$ for as-grown film (a) and FTJ (b).

在知道主曲线$\Phi(v)$(v 为积分变量)和$E_{max}(t)$信息的情况下, 利用下列方程对ΔP进行重构[23]:

$$\Delta P(E,t)=\Delta P_{\max}\int_0^{\frac{E}{E_{max}(t)}}\frac{dv}{v}\Phi(v) \tag{16}$$

结果如图 6 所示。可以看到, 相场模拟所生成的详尽数据, 在结合 IFM 进行深入分析后, 展现出了显著的拟合效果。通过对比分析, 我们发现, 重构处理所得的原生薄膜和铁电 FTJ 的极化翻转行为, 均与相场模拟数据高度吻合。相场模拟与 IFM 技术所得出的结论彼此相互印证, 不仅充分彰显了这两种先进技术在精确表征铁电材料开关动力学特性方面的卓越能力和高精度, 也进一步验证了它们在深入研究铁电材料微观机制及开关行为过程中的可行性和有效性。

为了获得开关时间和局部电场的统计分布, 我们进一步假设分布函数 Z 如下:

$$Z(E,E_{\max})=\frac{1}{E_{\max}}f\left(\frac{E}{E_{\max}}\right) \tag{17}$$

基于 $Z(E, E_{\max})$ 的归一化条件, $f(x)$ 需满足:

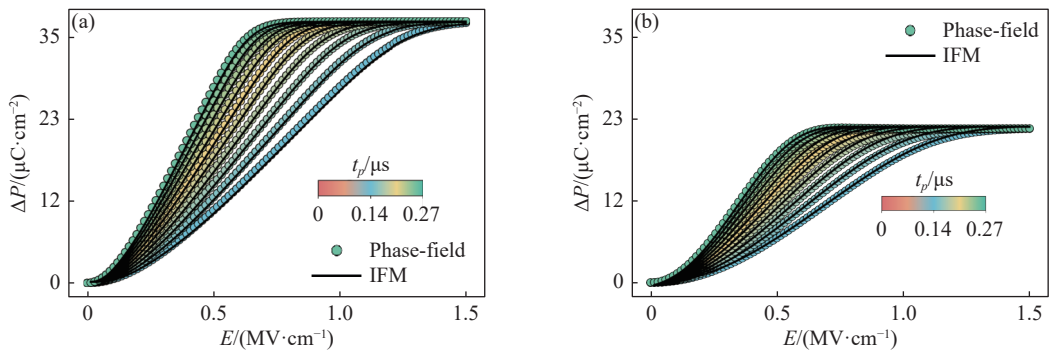

图 6　原生薄膜(a)和 FTJ(b)开关极化的 IFM 拟合结果

Fig. 6　The IFM fitting results of the switching polarization for as-grown film (a) and FTJ (b).

$$\int_0^{\infty} f(x)dx = 1 \tag{18}$$

$$\int_0^{\infty} xf(x)dx = 1 \tag{19}$$

$$f(x) = \frac{1}{x}\Phi\left(\frac{1}{\gamma x}\right) \tag{20}$$

假设施加电场 E 的时间 t 长于 $\tau(E)$ 时极化翻转会立刻发生。通过关系式 $t=\tau(E)$ 即可获得极化发生翻转的阈值电场 $E_{th}(t)$。因此，常数 γ 与 $E_{th}(t)$ 和 $E_{max}(t)$ 线性相关，即 $E_{max}(t)=\gamma E_{th}(t)$。参数 γ 通过下式获得：

$$\gamma = \int_0^{\infty} \frac{dx}{x^2}\Phi(x) \tag{21}$$

接下来，阈值电场 $E_{th}(t)$ 可以被表达为：

$$E_{th}(t) = \frac{E_a}{ln(t/\tau_0)^{\beta}} \tag{22}$$

其中 E_a 是与 E_0 相关的激活电场：

$$E_a = \frac{E_0}{\gamma} \tag{23}$$

基于上述公式，求得的参数值如表 2 所示。最后，可以得到特征极化翻转时间和局部电场的统计分布。局部电场的统计分布可以通过公式(9)得到。特征极化翻转时间的统计分布 $Q(t)$ 由 $\tau(E)$ 和 $f(E/E_{max})$ 决定：

$$Q(t) = \frac{1}{E_{max}} \cdot \left|\frac{d\tau}{dE}\right|^{-1} \cdot f\left(\frac{E}{E_{max}}\right) \tag{24}$$

再结合公式(19)，可以得到极化翻转时间与局域电场的统计分布。结果表明，在复杂应力与上下表面双夹持状态下的 FTJ 的极化翻转分布于更小的时间范围，如图 7(a) 所示；这一趋势与特征极化翻转时间的结果相同，表明复杂应力与机械边界条件可显著调节极化翻转速度，加快器件响应速度。如图 7(b) 所示，FTJ 的局域电场相较于原生薄膜分布更弥散化，且强度更小，这与 γ 的变化趋势相一致(如表 2 所示)。当 γ 值越小，系统越不均匀，表明复杂应力与双加持机械边界条件可使局域电场分布更不均匀。根据我们以往的结果，更强的非均匀性更有利于 FTJ 在神经形态计算中的应用[24]。

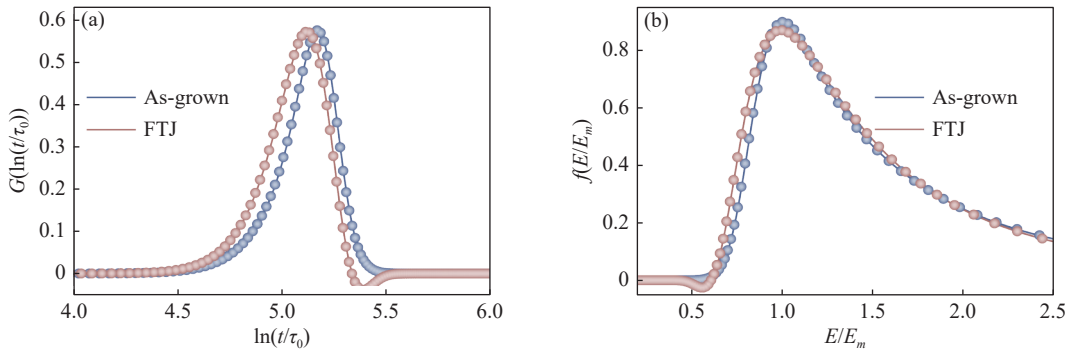

图 7 (a) 原生薄膜和 FTJ 极化翻转时间统计分布；(b) 原生薄膜和 FTJ 局部电场统计分布

Fig. 7 (a) Statistical distribution of polarization reversal time for as-grown and FTJ; (b) Statistical distribution of local electric field for as-grown and FTJ.

表 2 特征极化翻转时间、激活电场和 γ 的数值

Table2 The values of the characteristic polarization switching time, activation electric field, and γ.

	特征极化翻转时间	激活电场	γ
原生薄膜	τ_0=6.63 ns	E_a=5.66×10^9 V/m	0.931
FTJ	τ_0=6.54 ns	E_a=5.2×10^9 V/m	0.904

3 结论

本文通过相场模拟无应力的 BTO 原生薄膜和铁电隧道结模型，来探究上下表面电极晶格失配导致的非均匀应力对畴结构和 *P-E* 电滞回线的影响。为了探究该影响产生的机理，引入了极化翻转动力学模型，得到了原生薄膜和 FTJ 的极化强度在电场强度与脉冲宽度作用下的变化。进一步归一化求导并使用高斯型函数对曲线进行拟合，并结合对不同脉冲宽度 E_{max} 的经验公式的拟合，最终实现了对极化翻转行为的重构。进一步地，利用极化翻转时间的统计分布，可以发现 FTJ 有更小的统计极化翻转时间，表明复杂内应力可调节极化翻转速度。局域电场的统计分布表明，FTJ 局域电场相较于原生薄膜分布更弥散化，且强度更小，表明非均匀应力的作用使得局域电场分布更不均匀，这一特征表明

非均匀性特征有利于 FTJ 在神经形态计算领域的应用。此外, FTJ 更小的激活电场表明, 复杂应力与双夹持机械边界条件能够降低极化翻转所需的能量, 这提升了 FTJ 在能量效率方面的表现, 对于实现低功耗的神经形态计算具有重要意义。

参考文献:

[1] Dastgeer G, Nisar S, Rasheed A, et al. Atomically engineered, high-speed non-volatile flash memory device exhibiting multibit data storage operations[J]. Nano Energy, 2024, 119: 109106.

[2] Wan C, Cai P, Wang M, et al. Artificial Sensory Memory[J]. Advanced Materials, 2020, 32(15): 1902434.

[3] Zhang W, Yao P, Gao B, et al. Edge learning using a fully integrated neuro-inspired memristor chip[J]. Science, 2023, 381(6663): 1205-1211.

[4] Sun H, Wang J, Wang Y, et al. Nonvolatile ferroelectric domain wall memory integrated on silicon[J]. Nature Communications, 2022, 13(1): 4332.

[5] Liu X, Wei C, Sun T, et al. A $BaTiO_3$-based flexible ferroelectric capacitor for non-volatile memories[J]. Journal of Materiomics, 2025, 11(2): 100870.

[6] Kim I J, Lee J S. Ferroelectric transistors for memory and neuromorphic device applications[J]. Advanced Materials, 2023, 35(22): 2206864.

[7] Fang H, Wang J, Nie F, et al. Giant electroresistance in ferroelectric tunnel junctions via high-throughput designs: toward high-performance neuromorphic computing[J]. ACS Applied Materials Interfaces, 2024, 16(1): 1015-1024.

[8] Ma Z, Zhang Q, Valanoor N. A perspective on electrode engineering in ultrathin ferroelectric heterostructures for enhanced tunneling electroresistance[J]. Applied Physics Reviews, 2020, 7(4): 041316.

[9] Zhu Y, Mao H, Zhu Y, et al. CMOS-compatible neuromorphic devices for neuromorphic perception and computing: a review[J]. International Journal of Extreme Manufacturing, 2023, 5(4): 042010.

[10] Xu R, Liu S, Saremi S, et al. Kinetic control of tunable multi-state switching in ferroelectric thin films[J]. Nature Communications, 2019, 10(1): 1282.

[11] Ishibashi Y. Phenomenological theory of domain walls[J]. Ferroelectrics, 1989, 98(1): 193-205.

[12] Tagantsev A K, Stolichnov I, Setter N, et al. Non-Kolmogorov-Avrami switching kinetics in ferroelectric thin films[J]. Physical Review B, 2002, 66(21): 214109.

[13] Zhukov S, Fedosov S, Glaum J, et al. Effect of bipolar electric fatigue on polarization switching in lead-zirconate-titanate ceramics[J]. Journal of Applied Physics, 2010, 108(1): 014105.

[14] Song G, Zhang Y, Li S, et al. Dielectric relaxation behavior of BTO/LSMO heterojunction[J]. Nanomaterials, 2021, 11(5): 1109.

[15] Kumar D, Jin T, Sbiaa R, et al. Domain wall memory: physics, materials, and devices[J]. Physics Reports, 2022, 958: 1-35.

[16] 易潇源, 朱敏敏. 基于柔性衬底 PDMS 的钛酸钡电光调制器 [J]. 功能材料与器件学报, 2024, 30(05): 267-273.

[17] Song Y, Wang J, Huang H. Dielectric behavior of point defects on ferroelectric films for different substrate strains by phase–field simulations[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2024, 108(4): 20339.

[18] Zhang Y, Li J, Fang D. Oxygen-vacancy-induced memory effect and large recoverable strain in a barium titanate single crystal[J]. Physical Review B, 2010, 82(6): 064103.

[19] Sheng G, Hu J M, Zhang J X, et al. Phase-field simulations of thickness-dependent domain stability in $PbTiO_3$ thin films[J]. Acta Materialia, 2012, 60(8): 3296-3301.

[20] Kötz R, Carlen M. Principles and applications of electrochemical capacitors[J]. Electrochimica Acta, 2000, 45(15): 2483-2498.

[21] Tsui F, Smoak M C, Nath T K, et al. Strain-dependent magnetic phase diagram of epitaxial $La_{0.67}Sr_{0.33}MnO_3$ thin films[J]. Applied Physics Letters, 2000, 76(17): 2421-2423.

[22] Yuzyuk Y I, Sakhovoy R A, Maslova O A, et al. Phase transitions in $BaTiO_3$ thin films and $BaTiO_3/BaZrO_3$ superlattices[J]. Journal of Applied Physics, 2014, 116(18): 184102.

[23] Zhukov S, Acosta M, Genenko Y A, et al. Polarization dynamics variation across the temperature- and composition-driven phase transitions in the lead-free $Ba(Zr_{0.2}Ti_{0.8})O_3$–$x(Ba_{0.7}Ca_{0.3})TiO_3$ ferroelectrics[J]. Journal of Applied Physics, 2015, 118(13): 134104.

[24] Wang C, Guo L, Hu J, et al. Inhomogeneity-facilitated application of ferroelectric barium titanate thin films in artificial neuromorphic system[J]. Applied Physics Letters, 2024, 125(19): 192905.