

铅基材料及其器件的研究进展

杜剑宇¹, 钟 海², 葛 琛^{3,4}

(1. 天津理工大学理学院, 天津市量子光学与智能光子学重点实验室, 天津 300384; 2. 鲁东大学, 山东 烟台 264025;
3. 中国科学院物理研究所, 北京 100190; 4. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘 要: 铅基材料因其良好的互补金属氧化物半导体(CMOS)兼容性、高介电常数和超薄尺度下稳定的铁电性能, 被视为类脑计算器件的潜在功能材料。本文探讨了铅基铁电材料的基本物性(包括晶体结构、铁电性起源及结构相变机制), 并分析了其与类脑计算相关的关键特性(如铁电极化及氧离子迁移行为)。此外, 还总结了基于铅基铁电材料的神经形态器件结构, 探讨了当前面临的挑战(如界面缺陷调控、疲劳耐久性的改善等), 并展望了未来发展方向。

关键词: 铅基材料; 相变; 铁电随机存储器; 铁电场效应晶体管; 铁电隧道结

中图分类号: TN384 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2025)09-2506-12

网络出版时间: 2025-06-06



随着大数据、自动驾驶和人工智能(AI)技术的快速发展, 各国在人工智能领域的竞争日趋激烈。以 OpenAI、DeepSeek 为代表的先进 AI 模型依赖于海量非结构化数据(如语音、图像)的训练, 而传统计算架构在数据处理效率上的瓶颈已成为制约 AI 技术演进的核心挑战^[1]。

当前, 计算机系统普遍基于 Von Neumann 架构, 该架构在存储单元与处理单元之间通过数据总线进行数据交互, 属于串行处理方法。大规模数据计算时易受到“存储墙”和“功耗墙”问题的制约, 进而限制系统计算性能的提升^[2]。尤其在深度学习模型训练与推理过程中, 频繁的数据迁移使系统性能受限。因此, 突破传统架构的限制, 探索高效能计算范式, 已成为推动(AI)硬件创新的关键方向。

人脑的高效信息处理机制为此提供了灵感。人脑由大约 10^{11} 个神经元和 10^{15} 个突触组成。可以在 20 W 的低功率下, 实现高密度并行处理数据。受此启发, 类脑计算应运而生^[3]。其核心理念是基于存算一体构, 将数据存储与计算功能集成于同一硬件单元, 从而减少数据迁移带来的能耗损失, 提升计算并行度。相较于传统计算架构, 类脑计算在计算能效比和任务并行性方面表现优越, 在(AI)、大规

模数据分析等领域展现出广阔的应用潜力。但实现高性能类脑计算系统的关键在于材料与器件的突破。

目前, 存算一体架构依赖于新型存储器件, 如阻变存储器、相变存储器、磁性随机存储器和铁电存储器^[4]。这些器件在数据存储与计算功能融合方面展现出巨大潜力, 但仍面临稳定性、能耗、集成度和制造工艺等方面的挑战。因此, 探索更具优异性能和更高兼容性的材料体系成为关键研究方向。

在众多候选材料中, 铁电材料因其低功耗、高运行速度、高耐久性、抗辐照等优点, 在存算一体架构中极具发展前景。然而传统钙钛矿铁电材料面临厚度大、互补金属氧化物半导体(CMOS)兼容性差等问题。自 2011 年人们首次发现硅掺杂氧化铝(HfO_2)具有铁电性以来, 铅基氧化物因其 CMOS 兼容性, 成为存算一体器件领域的重要研究方向。铅基氧化物与传统钙钛矿铁电材料相比, HfO_2 及其掺杂体系(如 $\text{Hf}_{1-x}\text{Zr}_x\text{O}_2$ 、 Si:HfO_2 、 Al:HfO_2 等)在纳米尺度下依然能够维持稳定的极化翻转特性^[5]。该特性使其成为高密度铁电存储器、铁电场效应晶体管及铁电隧道结等新型存储-计算融合器件的理想选择, 为构建高能效类脑计算系统提供了重要支撑。

收稿日期: 2025-03-31。 修订日期: 2025-04-15。

基金项目: 国家自然科学基金项目(12304470, 12304123)。

第一作者: 杜剑宇(1989—), 男, 博士研究生。

通信作者: 葛 琛(1985—), 男, 博士, 研究员。

Received date: 2025-03-31. Revised date: 2025-04-15.

First author: DU Jianyu (1989—), male, Doctoral Candidate.

E-mail: dujianyu@email.tjut.edu.cn

Correspondent author: GE Chen (1985—), male, Ph.D., Research Fellow.

E-mail: gechen@iphy.ac.cn

然而, 铅基铁电器件仍面临极化保持能力衰减、循环稳定性较差、界面陷阱导致的可靠性问题, 以及高温工艺兼容性等挑战, 未来研究需进一步探索铅基氧化物的铁电相调控机制、界面工程优化策略及器件设计, 以推动高性能类脑计算芯片的实际应用。

1 铅基材料的基本性质

1.1 铅基材料的发展沿革

在 20 世纪初期, 铁电性最早在 Rochelle 盐中被发现。铁电材料具有双稳态特性, 非常适合数字计算中的二进制数据处理。因此受到学术界和工业界的关注。在 1952 年, Dudley Allen Buck 提出了铁电随机存储器, 随后, John Moll 和 Yasuo Tarui 在 1963 年提出了铁电场效应晶体管(FeFET)。但传统铁电材料在集成电路尺度缩放、低功耗及与硅工艺兼容性方面存在挑战。

直到 2011 年, 人们发现在掺 Si 的 HfO_2 中存在稳健的铁电性, 引发了人们对这种材料的广泛研究, 并再一次推动了铁电材料的发展^[6]。事实上早在 2007 年, 非铁电性的 HfO_2 作为高介电常数(k)栅极

绝缘层, 被广泛的应用于 CMOS 中^[7]。因此, 铅基材料中铁电性的发现, 对于推动铁电材料 CMOS 兼容性方面的发展至关重要, 这也改变了人们对传统萤石晶体结构材料的认识, 同时开辟了在超薄尺度上实现铁电性的可能性。随后的研究通过理论计算(如经典成核理论和 DFT-NEB 模型)和实验手段, 揭示了在掺杂、缺氧、机械应力及表面/界面能等多种因素共同作用下, 如何在 HfO_2 及其掺杂氧化物薄膜中诱导出正交铁电相^[8-9]。

总之, 铅基材料的发展从传统高介电常数材料应用到发现铁电性, 再到精确调控其晶相和铁电性能, 这一过程既是材料物理和化学基础研究的突破, 也是向下一代超大规模集成电路和新型电子器件迈进的重要里程碑。

1.2 氧化铅晶体结构及铁电性起源

铅基材料包括 HfO_2 、 ZrO_2 及以其为主的掺杂氧化物, 它们具有类似的物理化学性质。 HfO_2 薄膜一般由纳米晶粒组成, 每个晶粒由多个相构成(见图 1b)^[10], 这些相又可以分为 2 类: 极性和非极性(见图 1a)。非极性的结构包括立方晶系 ($Fm\bar{3}m$)、

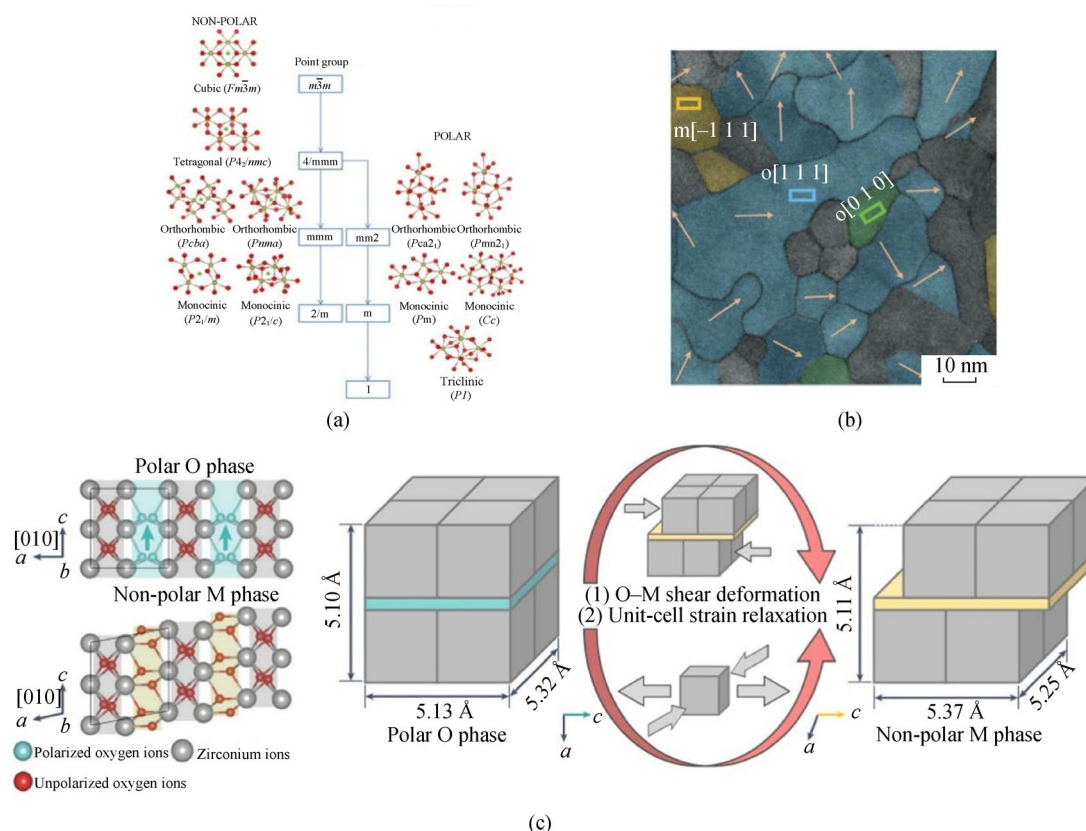


图 1 (a) HfO_2 薄膜的极性和非极性晶体结构^[11]; (b) 10 nm HZO 薄膜的原子分辨平面视图^[10]; (c) O 相与 M 相的原子结构示意图(左图), O—M 相变过程示意图(右图)^[12]

Fig. 1 (a) Polar and nonpolar crystal structures of HfO_2 thin films^[11]. (b) Representative large-scale image and atomically resolved plan view of the 10 nm HZO membrane^[10]. (c) Atomic structures of O and M phases (left), two components of O—M martensitic transformation (right)^[12]

四方晶系($P4_2/nmc$)、正交晶系($Pcba$ 和 $Pnma$)及单斜晶系($P2_1/m$ 和 $P2_1/c$)。极性晶系的结构包括正交晶系($Pca2_1$ 和 $Pmn2_1$)、单斜晶系(Pm 和 Cc)及三斜晶系($P1$)^[6]。Huan 等^[11]认为,2 种正交极性相($Pca2_1$ 和 $Pmn2_1$)均被认为是 HfO_2 铁电性的来源。Sang 等^[13]通过高角度环形暗场扫描透镜射电子显微镜观察到了非中心对称正交相($Pca2_1$)存在的证据,从而解决了氧化铪的铁电性来源问题。目前,大多数学者认为极性 HfO_2 薄膜主要对应于非中心对称的正交铁电相,通常归为 $Pca2_1$ 相(有时也提及 $Pmn2_1$ 相)。^[14]此外,在外延铪基薄膜中也报道了极性菱方相($R3m$ 和 $R3$)的存在^[15]。研究表明,极性正交相与非极性单斜相和四方相之间具有丰富的相变路径,反映了这一材料的复杂结构特性^[12,16–17]。由图 1c 左图可见,二者在原子排列和层间相互作用上表现出本质差异。O 相中,极化的氧离子位于 Zr 离子的非中心位置,形成极性 Zr–O 层。相比之下, M 相中非极性的 Zr–O 层发生相对滑移,且氧离子未极化,导致剩余极化消失。

铪基铁电性与传统钙钛矿型材料大不相同。传统铁电材料中,铁电性通常源于 B 位阳离子在氧八面体中的位移;而在铪基材料中,铁电性主要归因于晶胞中 8 个氧离子中约 4 个发生局部偏移,形成

局域化的电偶极子,从而产生自发极化,这正是实现铁电性的关键机制^[18]。由于这种局域化的极化分布使得极化切换可以在极薄尺度下实现,为实现单晶胞级别的精密控制提供了理论可能。

综上所述,非极性 HfO_2 薄膜则主要对应于单斜、四方和立方相,这些结构在热力学上更为稳定,但本身不具备铁电性。极性 HfO_2 薄膜主要与正交铁电相($Pca2_1$)对应,其非中心对称结构源于局部氧离子偏移,从而产生自发极化。

1.3 铪基材料的晶体结构相变

氧化铪在室温下的热力学稳定结构对应于单斜(m 相, 空间群 $P2_1/c$),随着温度的升高则分别对应于四方和立方相,但其不具备铁电性。所以在实际应用中,研究者往往要通过化学掺杂、氧空位调控、机械应变及界面调控等方法,将非极性热力学稳定相转变为亚稳态的极性正交相,从而实现 HfO_2 薄膜在超薄器件中的铁电功能^[18–21]。

1.3.1 温度、压强诱导相变 图 2 为 HfO_2 的温度依赖性相图和压力依赖性相图。由图 2 可见,在常温常压下, HfO_2 最稳定的结构为单斜相(m 相, 空间群 $P2_1/c$)。随着温度的增加,单斜相在 1700 °C 的温度下转变为四方相(t 相, 空间群 $P4_2/nmc$),之后在 2500 °C 的温度下转变为立方相(c 相, 空间群 $Fm\bar{3}m$)。

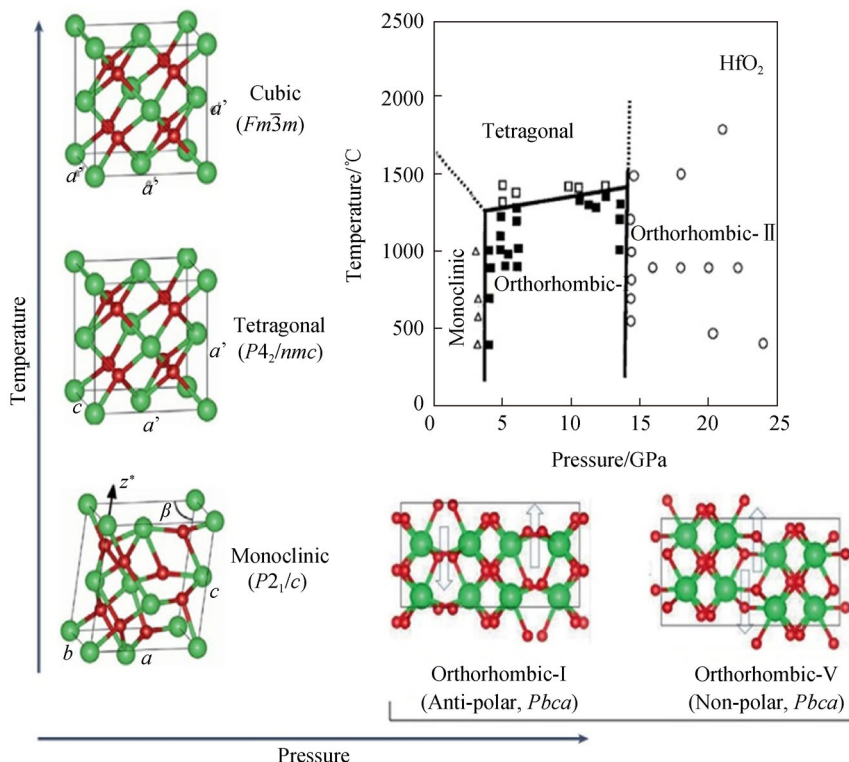


图 2 HfO_2 温度诱导相变示意图^[18]

Fig. 2 Phase diagrams of HfO_2 and temperature-dependent^[18]

HfO₂ 相除具有温度依赖性外, 还具有压强依赖性。随着压强的增加, HfO₂ 由 *m* 相转变为反极性 orthoI 相(空间群 *Pbca*), 之后转变为 orthoII 相(空间群 *Pnma*)(见图 2)。特别是反极性 orthoI 相不同于具有相同 *Pbca* 空间群的非极性 orthoV 相。此外, 随着压强的继续增加, 在 30 GPa 的压强下, orthoII 相出现, 该相具有正交斜方相(空间群为 *Pmnb*), 被认为是一种极具潜力的超硬材料^[18,22]。

1.3.2 掺杂诱导相变 2011 年, Börscke 发现掺硅 HfO₂ 薄膜中具有铁电性^[6]。之后, 科学家们又陆续发现其他掺杂元素(如 Al、Y、La、Zr 等)也能够改变 HfO₂ 局部的化学键合环境并引入内应力, 从而稳定正交铁电相, 在保证高结晶性的基础上, 增强材料铁电性^[23-24]。在这些掺杂元素中, Zr 尤为值得关注, 因其原子半径和 Hf 非常接近, 从而产

生相同的晶格常数(见图 3a)^[25]。随着 Zr 的掺杂浓度的变化, 其表现出明显的顺电-铁电-反铁电相变, 且其剩余极化强度要大于绝大多数其他元素的掺杂钪基材料(见图 3b 和图 3c)^[26]。

1.3.3 氧空位调控相变 在薄膜沉积初期, 适量的氧缺陷会改变局部电荷分布和晶格环境, 有助于降低先导四方相(*P4₂/nmc*)的自由能, 使该相更易形成, 这种先导相的形成成为后续正交相的转变提供了结构基础。在热处理和相变过程中, 氧缺陷会继续影响晶格畸变和局部应力状态。适度的氧缺陷能促进正交相(通常归为 *Pca2₁* 相)的稳定化, 因为这种缺陷有助于局部电荷不对称分布, 从而诱发局部氧离子的偏移, 形成自发极化。Wei 等^[27]认为, 如果氧缺陷浓度过高, 则会形成过多的缺陷偶极, 这会削弱正交相的完整性, 同时引起器件漏电, 降低整体

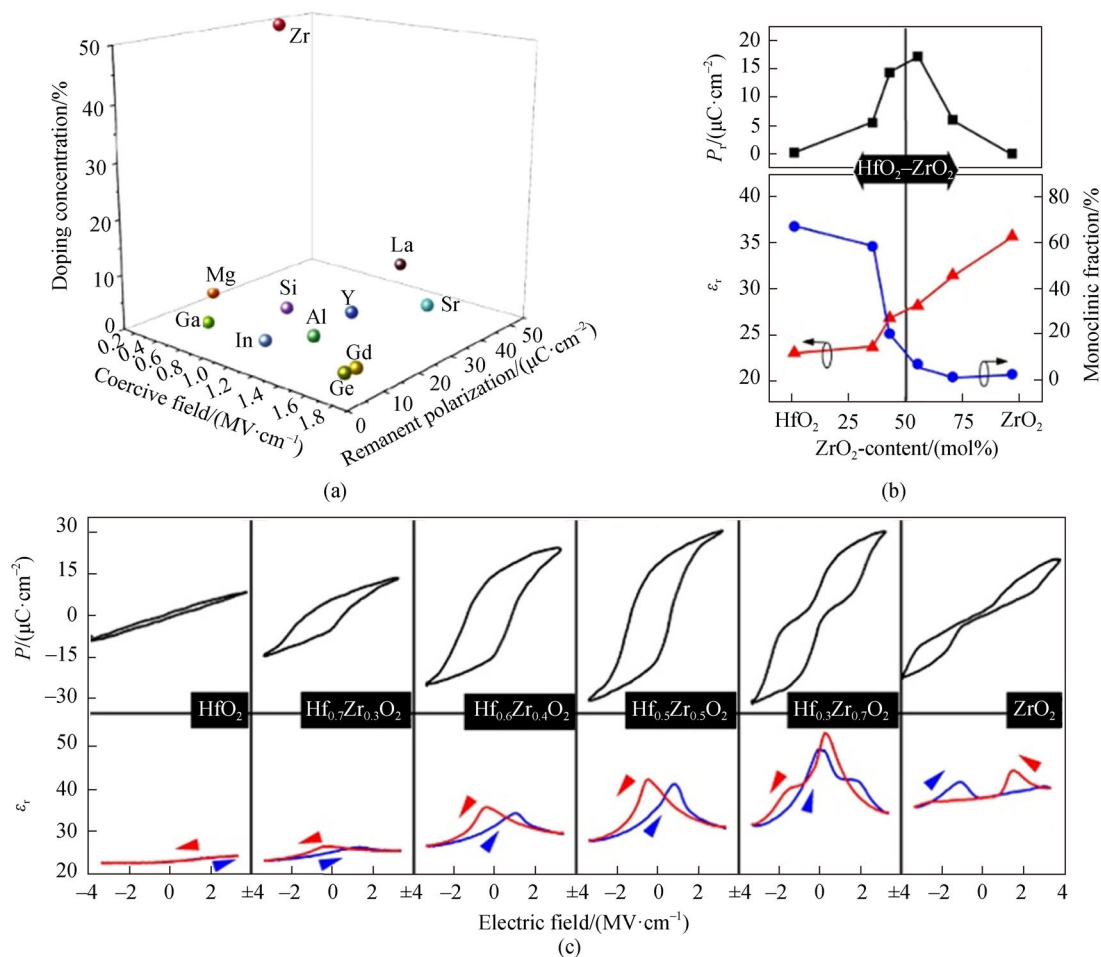


图 3 (a)不同掺杂元素对 HfO₂-ZrO₂薄膜剩余极化强度的影响; (b) HfO₂-ZrO₂固溶体系统中, 随着 HfO₂/ZrO₂混合比例的变化, 剩余极化强度、介电常数及单斜相比例的对比关系; (c) 在室温下, 厚度为 9 nm 的 HfO₂-ZrO₂基金属-绝缘体-金属(MIM)电容器的极化-电压(*P*-*V*)滞后特性^[25-26]

Fig. 3 (a) Remanent polarization depending of different dopants. (b) Remanent polarization, dielectric constant, and monoclinic phase fraction in the HfO₂-ZrO₂ solid solution with respect to the mixing ratio of the oxides. (c) *P*-*V* hysteresis of 9 nm thin HfO₂-ZrO₂ based metal-insulator-metal capacitors at room temperature^[25-26]

铁电性能。反之，氧含量控制在适中水平，有利于获得较高比例的正交相和优化的铁电性能。

1.3.4 机械应力与界面工程调控相变 机械应力对 HfO_2 及 $\text{Hf}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_2$ 薄膜中正交铁电相($Pca2_1$ 相)形成有重要影响。在实际器件中，上电极不仅起到电学作用，还会通过物理接触对 HfO_2 薄膜施加应力，从而在薄膜中产生局部应变，这种效应会使晶格产生畸变，改变各相之间的自由能平衡。原本在热力学上更稳定的单斜相($P2_1/c$)因受到应变影响，其形成受到抑制，而亚稳的铁电正交相则在这种应力状态下更易被“锁定”下来。通过选择合适的上电极材料、控制其厚度调整沉积工艺，可以获得均匀且适中的应力场，进而有效压制单斜相的形成，促进正交相的稳定化。这样的应力调控不仅有助于提高正交相的比例，而且改善了薄膜的整体铁电性能，为器件实现高性能、低功耗和高集成度提供了重要保障。

单一因素(如单独掺杂或仅调控氧缺陷)可能不足以显著改变 HfO_2 薄膜的相组成，但当掺杂、氧缺陷调控、机械应力与界面工程共同作用时，会显著改变材料的自由能分布，使原本在平衡状态下不具备铁电性的相通过动力学路径“冻结”下来，形成亚稳的 $Pca2_1$ 相。

1.4 钪基铁电材料基本物性

1.4.1 介电性 钪基材料在纳米电子器件中应用广泛，其优异的介电性能与价态变化特性构成了器件功能的关键基础。钪基氧化物具有较高的介电常数(约 20~25)和宽带隙(约 5.3~5.7 eV)，这使它们在 CMOS 工艺中被广泛应用于栅介质中，既可以保证低漏电又能实现器件尺寸的缩小^[28]。 HfO_2 作为高介电常数(K)材料已被用作场效应晶体管的栅氧化层，

其介电特性为器件提供了稳定的绝缘层功能^[7]。需指出，不同晶格结构的钪基材料具有不同的 K 值，其中立方相和四方相具有比单斜更高的 K 值^[29]。

1.4.2 铁电性 铁电性作为材料的重要特性，具有自发电电极化，且可通过施加电场切换极化方向。铁电性已被广泛应用于低功耗存储器件、传感和能源等领域。而钪基铁电材料的铁电性是其引起学术界和工业界重视的最主要原因。

钪基铁电薄膜的独特之处在于其可在 30 nm 以下的薄膜中表现出铁电性；而传统铁电材料，如锆钛酸铅 [$\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$]、钛酸钡 (BaTiO_3) 及铋酸铋锶 ($\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$) 等，往往需要大于 50 nm 的厚度才能完全体现铁电性^[30]。此外，密度泛函理论计算表明，在钪基铁电材料中存在扁平声子带，导致电偶极子存在极端局域化，这与传统铁电体中发现的弥散偶极子形成鲜明对比。这些局域偶极子的独立可控性为高密度铁电器件的发展提供了依据^[31]。

自从 Böschke 等在硅掺杂的 HfO_2 薄膜中发现了铁电性之后，学术界普遍认为钪基铁电材料的铁电性，主要来源于 $Pca2_1$ 空间群的亚稳态正交相，且应变被认为在铁电相形成的过程中起关键作用^[32–33]。研究者在不同的生长方式下，通过调节掺杂剂及生长参数对钪基铁电材料的铁电性做了系统研究。本工作也对不同生长方式下的钪基铁电材料的铁电性做了系统总结(见表 1)。由表 1 可见，和其它传统铁电材料相比，钪基铁电材料商业化面临的主要问题是可靠性，尤其在耐久性方面，与传统的 PZT 铁电电容器不同，钪基铁电材料在 10^9 次开关循环后很容易发生故障，而前者在 10^{15} 次开关循环后仍能保持稳定。

表 1 钪基铁电材料铁电性

Table 1 Summary of ferroelectric properties of hafnium dioxide-based ferroelectrics

Materials	Deposition methods	$P_r/(\mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2})$	$E_c/(\text{MV}\cdot\text{cm}^{-1})$	Endurance	Reference
HfO_2	Atomic layer deposition	13.5	1	N/A	[34]
HfO_2	Atomic layer deposition	10.4	1	10^8	[35]
Polycrystalline Fe: HfO_2	Sputter deposition	8.8	2	N/A	[36]
Zr: HfO_2	Pulsed laser deposition	34	2	10^9	[37]
Zr: HfO_2	Pulsed laser deposition	2.6	2.7	10^8	[38]
La: HfO_2	Atomic layer deposition	28	1	10^5	[39]
Gd: HfO_2	Atomic layer deposition	35	1.5	10^6	[40]
Si: HfO_2	Atomic layer deposition	15	1	10^6	[41]
LT: HfO_2	Pulsed laser deposition	19	5.5	N/A	[42]

P_r is remnant polarization values; E_c is coercive field; N/A is not applicable.

1.4.3 氧离子迁移 氧离子迁移对于铅基阻变存储器的电阻切换和铅基铁电材料极化切换均十分重要。不一样的是, 电阻切换的特征是热激发的长程氧离子运动, 而极化切换是外部电场驱动下的局域运动。不论是氧离子迁移导致的电阻切换还是极化切换, 都可能导致器件的滞后现象。Nukalas 等^[43]于 2021 年通过原子分辨率显微镜研究了 $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ (LSMO)/HZO 电容器中的氧离子移动, 发现氧离子可以通过 HZO 层在顶部电极和底部电极之间迁移, 在这个过程中, HZO 主要充当氧离子迁移通道, 有时也充当氧离子陷阱, 而这种过程往往在毫秒, 甚至更短的时间内发生。

综上所述, 铅基铁电材料既具有高介电常数和宽带隙的优良介电性能(支持低漏电与高稳定性), 又展现出依赖于氧离子迁移引起的局部价态变化, 这一双重特性为实现电阻切换、铁电开关和非易失性存储及神经形态器件提供了物理基础。

2 铅基铁电器件

2.1 铁电随机存储器(FeRAM)

Duley 于 1952 年首次提出 FeRAM 的概念。FeRAM 核心结构为铁电电容器, 由 2 个电极和中间铁电层构成^[44]。其核心原理是利用铁电薄膜(如 $\text{Pca}2_1$ 正交相的 HfO_2)所具有的可逆自发极化进行读写。写入时, 通过施加高于矫顽电场(E_c)的电压脉冲, 使铁电薄膜极化反转, 从而将存储单元置为“1”或“0”(见图 4a)^[45], 这一过程依赖于铁电材料快速的极化切换特性。读取 FeRAM 时, 通常施加 1 个电压脉冲以检测存储在铁电电容器中的电荷量, 从而确定存储的极化状态。由于读操作可能会引起极化反转, 即发生破坏性读取, 因此, 在很多系统中, 读出后需要对存储状态进行重写。这种破坏性读取模式在传统 FeRAM 中较为常见, 并且在实际器件中已经通过刷新机制得到补偿, 但是这种方法不适合于神经形态计算。

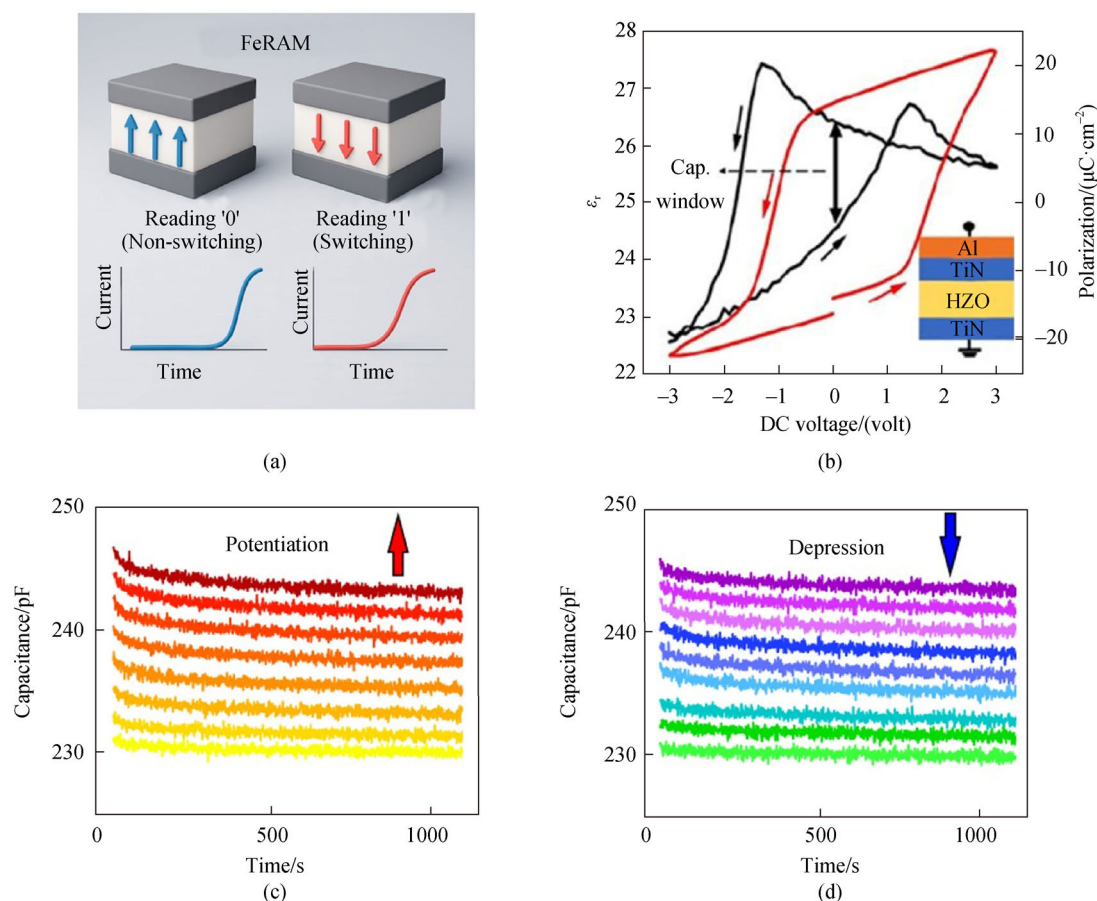


图 4 (a) 铁电随机存取存储器中所采用的读取方式; (b) HZO 电容器表现出非对称的电容-电压($C-V$)特性; (c)-(d) TiN/HZO/Pt 电容器的增强和抑制态^[46-47]

Fig. 4 (a) Schematic of the readout method employed in ferroelectric random-access memories. (b) Asymmetric capacitance-voltage ($C-V$) characteristics of HZO capacitors. Potentiation (c) and depression (d) states in TiN/HZO/Pt capacitors^[46-47]

为了解决这一问题,可以通过不对称化蝶形电容-电压曲线,在零偏压下打开电容存储窗口,从而实现非破坏性读取。近年来,Luo 等^[46]通过引入氧空位的非均匀分布,在 TiN/HZO/TiN 电容器中实现了稳定的电容窗口(见图 4b)。此外,研究者利用 FeRAM 器件中铁电薄膜的部分极化反转,实现了多级反转,实现了多级存储,从而突破了传统二值存储的限制,对于实现模拟神经形态计算中的权重更新有重要意义。Wu 等^[47]通过引入具有不同功函数的电极,在零偏压下实现了对电容记忆窗口的稳定调制。电容器通过不同幅值的电压脉冲输入,并在零偏压下使用交流信号读取。这些器件实现了 8 个电阻态,并展现出较长时间的保持特性(见图 4c 和图 4d),这也表明 FeRAM 器件在神经形态计算中的潜在应用。

尽管 FeRAM 器件在操作速度、低功耗及集成度等方面展现出巨大潜力,但器件疲劳、压印效应、唤醒效应及器件差异性给商业化应用带来挑战。未来需要进一步优化电极及界面,以期实现更高稳定

性和更长寿命的 FeRAM 器件。

2.2 铁电晶体管(FeFET)

FeFET 器件通常是在传统金属-氧化物-半导体场效应晶体管(MOSFET)中利用一层超薄的铅基铁电薄膜(如 HfO_2 或 $\text{Hf}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_2$)来作为栅极电介质材料,形成金属-铁电-半导体(MFS)或金属-铁电-绝缘体-半导体(MFIS)结构^[48]。FeFET 的基本工作原理为:当施加正向或反向电压时,铁电薄膜的自发极化发生反转,进而通过积累或耗尽载流子来调节通道电导,实现数据的存储和逻辑操作。相比传统的浮栅存储器,FeFET 器件具备低功耗和高速切换的优势,同时,由于采用 1T 结构,其器件面积大幅缩小,有利于高密度集成。传统的钙钛矿型铁电材料通常显示出较小的 E_c ,需要几百纳米厚的薄膜才能获得合理的记忆窗口。而铅基铁电材料显示出更高的 E_c ,即使在纳米尺度下仍保持不错的记忆窗口,从而有利于器件集成(见图 5a)^[49]。因此,铅基铁电材料一经发现便被应用于铁电晶体管。

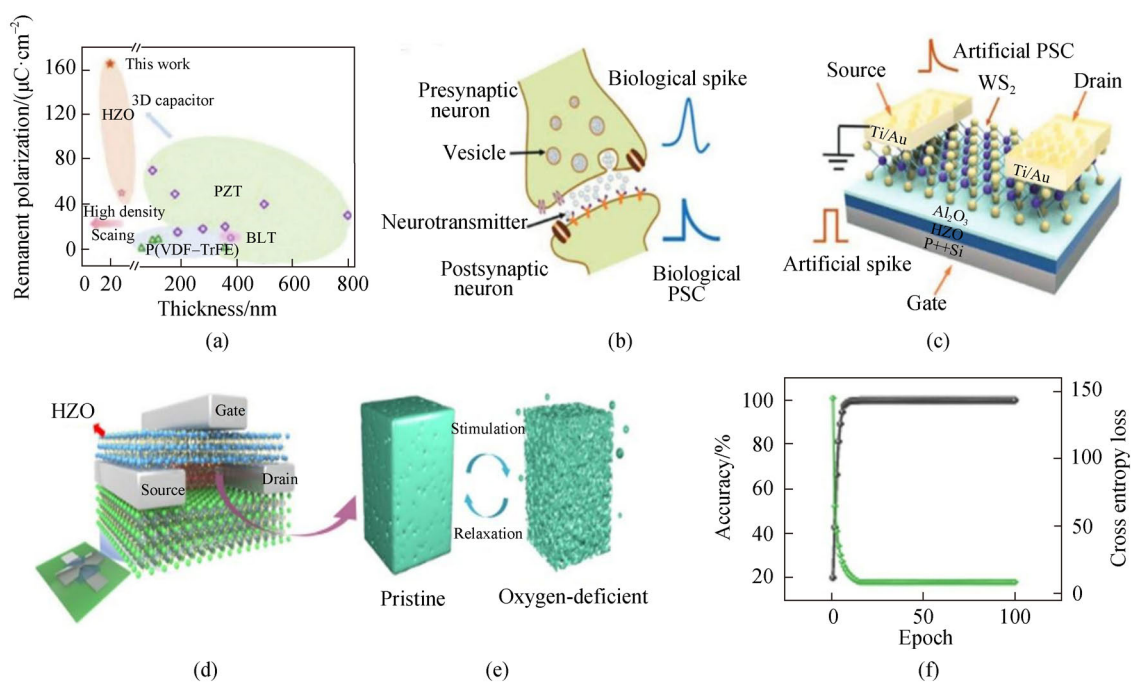


图 5 (a) 各类铁电材料的剩余极化强度与厚度的对比; (b)–(c) 生物突触与人工三端突触晶体管的示意图; (d) LSMO/HZO 器件结构图; (e) 器件在本征态与缺氧态之间的结构相变示意图; (f) 基于所提出储备系统的语音识别分类准确率及其损失函数的演化过程^[50–52]

Fig. 5 (a) Remanent polarization and thickness benchmarks for ferroelectric materials. (b)–(c) Schematic of the synapse and artificial three-terminal synaptic transistor. (d) Schematic diagram of the ferroelectric $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ -based FET. (e) Schematic representation of the structural transition between the pristine and oxygen-deficient phases. (f) Classification accuracy of speech recognition with the proposed reservoir system along with the evolution of the cross-entropy loss^[50–52]

此外, FETs 沟道材料的灵活配置, 可以实现各种新颖功能。Kamaei 等^[53]在最新的工作中, 将不同

的二维材料和 HZO 结合, 并展现出 4 种不同的 FET, 其中, 包括 NC-FETs 和 FeFET, 从而实现了逻辑器

件和神经形态器件的集合。Chen 等构建了超薄 HZO 和二维材料 WS₂ 的三端铁电晶体管, 并实现了高达 10⁵ 的开关比; 同时还演示了生物突触行为, 如长程增强、长程抑制、尖峰幅度依赖可塑性, 以及尖峰频率依赖可塑性等能力(见图 5b 和图 5c)。在近期关于二氧化铪的场效应晶体管的研究中, 通过利用 HZO 极化和氧迁移的耦合特性, 有效的调制了莫特材料 LSMO 的沟道电导^[51]。该工作还展示了高性能的储层计算系统, 并实现了 100%精度的模式分类和语音识别功能(见图 5d~图 5f)^[52]。

虽然铅基 FeFET 在应用方面取得了重大进展, 但依旧面临器件可靠性问题。在 FeFET 极化切换的过程会导致界面层退化, 从而导致器件发生疲劳。此外退极化场会导致保持时间变短。因此, 优化界

面层结构对于提高 FeFET 可靠性至关重要。

2.3 铁电隧道结(FTJ)

在铅基铁电器件中, FTJ 器件因其非破坏性读取、低功耗及多级存储能力, 在类脑计算和内存计算领域展现出巨大潜力。FTJ 器件通常由 1 层极薄的铅基铁电薄膜(如 HfO₂ 或 Hf_xZr_{1-x}O₂)夹在 2 个电极之间构成。

与铁电电容器相比, 区别在于 FTJ 器件中的铁电薄膜在纳米量级, 以利于电子隧穿。当施加电场时, 铁电薄膜内部的自发极化状态发生切换, 导致隧穿势垒发生改变, 从而使得通过电子隧穿实现的电流呈现出明显的依赖于极化方向的变化(见图 6a 和图 6b)^[54]。通过施加适当的编程电压, 就可以实现多级存储, 并用于实现神经形态计算。

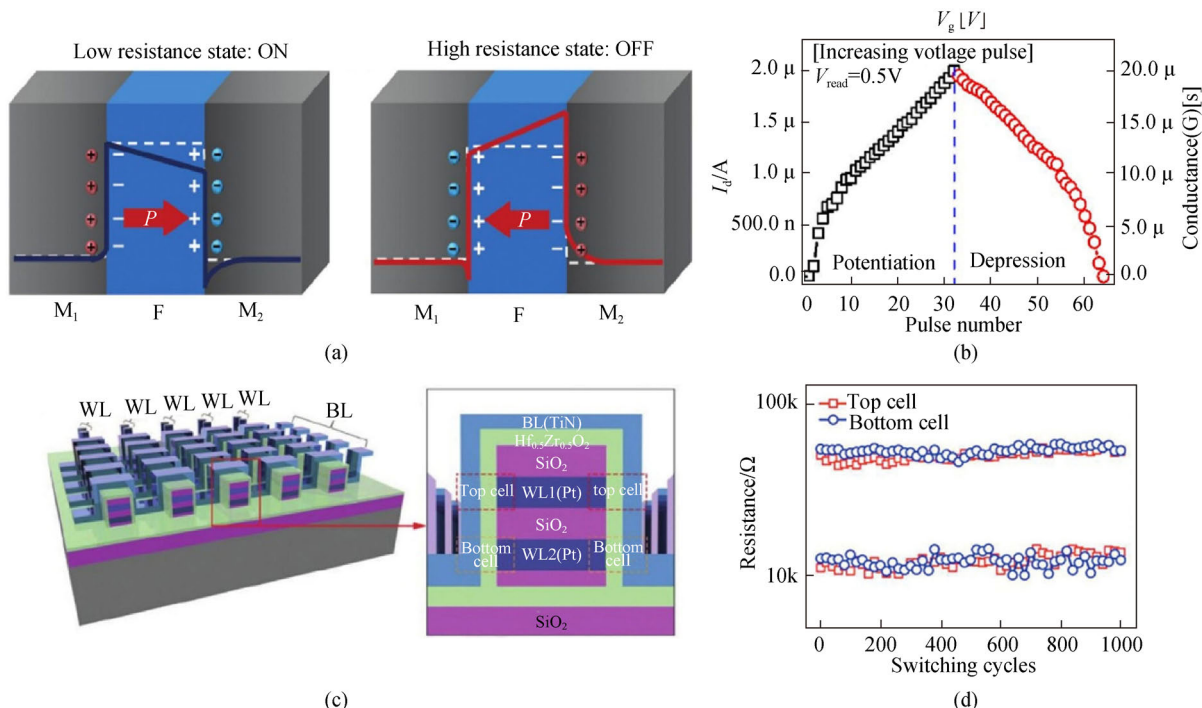


图 6 (a) 金属-铁电体-金属(MFM)结构铁电隧道结器件的隧穿电阻效应示意图, 其中, ON(左)与 OFF(右)态的势垒轮廓对应于铁电极化方向(箭头)的变化; (b) TiN/HZO/TiN 结构展现的 32 级电导增强与抑制特性曲线; (c) 基于 HZO 的高密度三维垂直 FTJ 阵列结构示意图; (d) 在双极脉冲序列驱动下器件的疲劳特性^[54-57]

Fig. 6 (a) Tunneling electroresistance in a MFM-type FTJ, showing barrier profiles for the ON (left) and OFF (right) states as set by the polarization direction (arrows). (b) 32 levels potentiation and depression states of the TiN/HZO/TiN. (c) Schematic diagram of high-density 3D vertical HZO-based FTJ array. (d) Endurance behavior under a bipolar pulse sequence^[54-57]

基于 FTJ 的神经形态器件应用已经在不同工作中得以验证。Mittermeier 等^[58]构建了 TiN/Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂/Pt 铁电隧道结作为人工突触器件, 并模拟了神经形态行为, 通过改变动作电位的幅度和宽度, 对尖峰时间依赖可塑性进行了测量; 此外, 通过成核限制(NLS)模拟证实了实验结果, 表明在 FTJ 型器件中, 其存储状态的数量和器件内的铁电畴的数量有直接关系。因此, 当器件尺寸与铁电晶粒尺寸相

当时, 这种多级电导调控, 可能会失效。Oh 等^[56]提出一种基于 HfZrO_x 的铁电突触器件, 该器件具有 32 级剩余极化状态, 此外将其用于神经形态计算, 显示了其在未来高密度神经形态系统中的应用前景。Chen 等^[55]制备了基于 HZO 的三维垂直结构(见图 6c)。该器件表现出高集成密度、低功耗(1.8 pJ)和良好的稳定性(大于 10³ 循环)(见图 6d)。

尽管目前铅基 FTJ 器件在隧穿电阻比(TER)上

与传统钙钛矿基 FTJ 器件相比仍存在一定差距，但其在超薄尺度下保持优异铁电性的优势，以及与 CMOS 工艺的高度兼容性，使其在实现 3D 集成和高密度阵列方面具有明显潜力。研究人员正在通过进一步优化沉积工艺、界面工程和掺杂策略，致力于提高器件的 TER、降低操作电压和提升器件稳定性，从而推动 FTJ 技术向商业化应用迈进。

3 总结与展望

虽然铅基材料的铁电性的发现出于偶然，但学术界和工业界在材料制备、晶体工程、界面与应力调控、多级存储等多个方面付出了巨大努力，并取得了显著进展。此外，随着工业界对铁电器件集成度的需求，3D DRAM 电容器技术蓬勃发展。而非铁电的铅基介电层早已广泛应用于高 K 金属栅极晶体管，因此将铅基材料引入 FeRAM、FeFET 及 FTJ 中也就顺理成章。

尽管在基于 HfO_2 的铁电材料及其器件应用方面取得了重大进展，但仍然存在诸多基础性和实际应用中的挑战。基于铅基器件制备在循环稳定性方面面临显著困难。器件在早期循环阶段会出现“唤醒效应”，这是由场诱导的相变、电荷去陷与再分布、畴壁脱钉，以及靠近电极的非极性界面层发生击穿后退极化场减弱所致。而在后期的循环阶段，器件则面临疲劳问题，表现为剩余极化强度(P_r)显著降低，最终常导致器件的失效，这将影响铅基铁电器件的稳定性。导致疲劳问题的机制大多与铅基铁电材料大矫顽电场、电极接触界面电荷捕获及材料内部缺陷的形成和再分布有关，但具体机制不明。为了降低疲劳特性，研究者已提出多种方案，包括 Zr 掺杂的基础上掺入其他元素^[59]、插入夹层^[60]、界面处理^[61]、电极优化等方法^[62]。

展望未来，随着对薄膜微观极化机制和界面物理的进一步理解，以及新工艺和新材料的不断涌现，铅基铁电神经形态器件有望在实现低功耗、高速、高集成度内存与类脑计算系统方面发挥关键作用，为 AI 及下一代计算平台的构建提供强有力的技术支持。

(第二十七届中国科协年会学术论文)

参考文献:

[1] NAJAFABADI M M, VILLANUSTRE F, KHOSHGOFTAAAR T M, et al. Deep learning applications and challenges in big data analytics[J]. J Big Data, 2015, 2(1): 1–12.
[2] UPADHYAY N K, JIANG H, WANG Z, et al. Emerging memory

devices for neuromorphic computing[J]. Advanced Materials Technologies, 2019, 4(4): 1800589.
[3] MARKOVIĆ D, MIZRAHI A, QUERLIOZ D, et al. Physics for neuromorphic computing[J]. Nat Rev Phys, 2020, 2: 499–510.
[4] SHAO M H, ZHAO R T, LIU H F, et al. Challenges and recent advances in HfO_2 -based ferroelectric films for non-volatile memory applications[J]. Chip, 2024, 3(3): 100101.
[5] KIM M K, LEE J S. Ferroelectric analog synaptic transistors[J]. Nano Lett, 2019, 19(3): 2044–2050.
[6] BÖSCKE T S, TEICHERT S, BRÄUHAUS D, et al. Phase transitions in ferroelectric silicon doped hafnium oxide[J]. Appl Phys Lett, 2011, 99(11): 112904.
[7] ROBERTSON J. High dielectric constant oxides[J]. Eur Phys J Appl Phys, 28(3): 265–291.
[8] XU X H, HUANG F T, QI Y B, et al. Kinetically stabilized ferroelectricity in bulk single-crystalline HfO_2 : Y[J]. Nat Mater, 2021, 20(6): 826–832.
[9] LIU J, LIU S, LIU L H, et al. Origin of pyroelectricity in ferroelectric HfO_2 [J]. Phys Rev Appl, 2019, 12(3): 034032.
[10] ZHONG H, LI M Q, ZHANG Q H, et al. Large-scale $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ membranes with robust ferroelectricity[J]. Adv Mater, 2022, 34(24): e2109889.
[11] HUAN T D, SHARMA V, ROSSETTI G A, et al. Pathways towards ferroelectricity in hafnia[J]. Phys Rev B, 2014, 90(6): 064111.
[12] LI X Y, LIU Z H, GAO A, et al. Ferroelastically protected reversible orthorhombic to monoclinic-like phase transition in ZrO_2 nanocrystals[J]. Nat Mater, 2024, 23(8): 1077–1084.
[13] SANG X H, GRIMLEY E D, SCHENK T, et al. On the structural origins of ferroelectricity in HfO_2 thin films[J]. Appl Phys Lett, 2015, 106(16): 162905.
[14] ZHONG H, JIN K J, et al. Hafnia-based neuromorphic devices[J]. Appl Phys Lett, 2024, 125(15): 150501.
[15] WEI Y F, NUKALA P, SALVERDA M, et al. A rhombohedral ferroelectric phase in epitaxially strained $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ thin films[J]. Nat Mater, 2018, 17(12): 1095–1100.
[16] WANG S Y, LI X Y, LIU Z H, et al. Unconventional ferroelectric–ferroelastic switching mediated by non-polar phase in fluorite oxides[J]. Adv Mater, 2025, 37(15): e2415131.
[17] LI X Y, ZHONG H, LIN T, et al. Polarization switching and correlated phase transitions in fluorite-structure ZrO_2 nanocrystals (adv. mater. 28/2023)[J]. Adv Mater, 2023, 35(28): 2370196.
[18] SCHROEDER U, PARK M H, MIKOLAJICK T, et al. The fundamentals and applications of ferroelectric HfO_2 [J]. Nat Rev Mater, 2022, 7: 653–669.
[19] HUANG C, ZHANG Y K, ZHENG S Z, et al. Interface effects induced by a ZrO_2 Seed layer on the phase stability and orientation of HfO_2 ferroelectric thin films: A first-principles study[J]. Phys Rev Applied, 2021, 16(4): 044048.
[20] PARK H W, ROH J, LEE Y B, et al. Modeling of negative capacitance in ferroelectric thin films[J]. Adv Mater, 2019, 31(32): 1805266.
[21] PARK M H, LEE Y H, KIM H J, et al. Ferroelectricity and antiferroelectricity of doped thin HfO_2 -based films[J]. Adv Mater, 2015, 27(11): 1811–1831.
[22] OHTAKA O, FUKUI H, KUNISADA T, et al. Phase relations and volume changes of hafnia under high pressure and high temperature[J]. J Am Ceram Soc, 2001, 84(6): 1369–1373.
[23] YUN Y, BURAGOHAIN P, LI M, et al. Intrinsic ferroelectricity in Y-doped HfO_2 thin films[J]. Nat Mater, 2022, 21: 903–909.

- [24] MUELLER S, MUELLER J, SINGH A, et al. Incipient ferroelectricity in Al-doped HfO_2 thin films[J]. *Adv Funct Mater*, 2012, 22(11): 2412–2417.
- [25] STARSCHICH S, BOETTGER U. An extensive study of the influence of dopants on the ferroelectric properties of HfO_2 [J]. *J Mater Chem C*, 2017, 5(2): 333–338.
- [26] MÜLLER J, BÖSCKE T S, SCHRÖDER U, et al. Ferroelectricity in simple binary ZrO_2 and HfO_2 [J]. *Nano Lett*, 2012, 12(8): 4318–4323.
- [27] WEI J C, JIANG L L, HUANG M L, et al. Intrinsic defect limit to the growth of orthorhombic HfO_2 and $(\text{Hf}, \text{Zr})\text{O}_2$ with strong ferroelectricity: First-principles insights[J]. *Adv Funct Mater*, 2021, 31(42): 2104913.
- [28] VESCIO G, LÓPEZ-VIDRIER J, LEGHRIB R, et al. Flexible inkjet printed high- k HfO_2 -based MIM capacitors[J]. *J Mater Chem C*, 2016, 4(9): 1804–1812.
- [29] WANG Y, ZAHID F, WANG J, et al. Structure and dielectric properties of amorphous high- κ oxides: HfO_2 , ZrO_2 , and their alloys[J]. *Phys Rev B*, 2012, 85(22): 224110.
- [30] IHLEFELD J F, HARRIS D T, KEECH R, et al. Scaling effects in perovskite ferroelectrics: Fundamental limits and process-structure-property relations[J]. *J Am Ceram Soc*, 2016, 99(8): 2537–2557.
- [31] LEE H J, LEE M, LEE K, et al. Scale-free ferroelectricity induced by flat phonon bands in HfO_2 [J]. *Science*, 2020, 369(6509): 1343–1347.
- [32] MIKOLAJICK T, PARK M H, BEGON-LOURS L, et al. From ferroelectric material optimization to neuromorphic devices[J]. *Adv Mater*, 2023, 35(37): e2206042.
- [33] HSAIN H A, LEE Y, MATERANO M, et al. Many routes to ferroelectric HfO_2 : A review of current deposition methods[J]. *J Vac Sci Technol A*, 2022, 40(1): 010803.
- [34] PAL A, NARASIMHAN V K, WEEKS S, et al. Enhancing ferroelectricity in dopant-free hafnium oxide[J]. *Appl Phys Lett*, 2017, 110(2): 022903.
- [35] KIM K D, PARK M H, KIM H J, et al. Ferroelectricity in undoped- HfO_2 thin films induced by deposition temperature control during atomic layer deposition[J]. *J Mater Chem C*, 2016, 4(28): 6864–6872.
- [36] SHIRAIISHI T, CHOI S, KIGUCHI T, et al. Fabrication of ferroelectric Fe doped HfO_2 epitaxial thin films by ion-beam sputtering method and their characterization[J]. *Jpn J Appl Phys*, 2018, 57(11S): 11UF02.
- [37] LYU J, FINA I, BACHELET R, et al. Enhanced ferroelectricity in epitaxial $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ thin films integrated with $\text{Si}(001)$ using SrTiO_3 templates[J]. *Appl Phys Lett*, 2019, 114(22): 222901.
- [38] LIU Z H, ZHONG H, XIE D G, et al. Reversible fatigue-rejuvenation procedure and its mechanism in $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ epitaxial films[J]. *J Phys Condens Matter*, 2023, 35(20): anInstituteofPhysicsjournalvol.35.
- [39] SCHROEDER U, RICHTER C, PARK M H, et al. Lanthanum-doped hafnium oxide: A robust ferroelectric material[J]. *Inorg Chem*, 2018, 57(5): 2752–2765.
- [40] HOFFMANN M, SCHROEDER U, SCHENK T, et al. Stabilizing the ferroelectric phase in doped hafnium oxide[J]. *J Appl Phys*, 2015, 118(7): 072006.
- [41] MUELLER S, SUMMERFELT S R, MULLER J, et al. Ten-nanometer ferroelectric films for next-generation FRAM capacitors[J]. *IEEE Electron Device Lett*, 2012, 33(9): 1300–1302.
- [42] ZHOU C, MA L Y, FENG Y P, et al. Enhanced polarization switching characteristics of HfO_2 ultrathin films via acceptor-donor co-doping[J]. *Nat Commun*, 2024, 15(1): 2893.
- [43] NUKALA P, AHMADI M, WEI Y F, et al. Reversible oxygen migration and phase transitions in hafnia-based ferroelectric devices[J]. *Science*, 2021, 372(6542): 630–635.
- [44] MIKOLAJICK T, SCHROEDER U, SLESAZECK S. The past, the present, and the future of ferroelectric memories[J]. *IEEE Trans Electron Devices*, 2020, 67(4): 1434–1443.
- [45] SCHENK T, YURCHUK E, MUELLER S, et al. About the deformation of ferroelectric hystereses[J]. *Appl Phys Rev*, 2014, 1(4): 041103.
- [46] LUO Y C, HUR J, WANG P N, et al. Non-volatile, small-signal capacitance in ferroelectric capacitors[J]. *Appl Phys Lett*, 2020, 117(7): 073501.
- [47] WU S Y, ZHANG X M, CAO R R, et al. Multi-state nonvolatile capacitances in HfO_2 -based ferroelectric capacitor for neuromorphic computing[J]. *Appl Phys Lett*, 2024, 124(10): 102902.
- [48] KHAN A I, KESHAVERZI A, DATTA S. The future of ferroelectric field-effect transistor technology[J]. *Nat Electron*, 2020, 3: 588–597.
- [49] KIM J Y, CHOI M J, JANG H W. Ferroelectric field effect transistors: Progress and perspective[J]. *APL Mater*, 2021, 9(2): 021102.
- [50] CHEN L, WANG L, PENG Y, et al. A van der waals synaptic transistor based on ferroelectric $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ and 2D tungsten disulfide[J]. *Adv Electron Mater*, 2020, 6(6): 2000057.
- [51] LIU Z H, ZHANG Q H, XIE D G, et al. Interface-type tunable oxygen ion dynamics for physical reservoir computing[J]. *Nat Commun*, 2023, 14(1): 7176.
- [52] LIU H F, LU T Q, LI Y X, et al. Flexible quasi-van der waals ferroelectric hafnium-based oxide for integrated high-performance nonvolatile memory[J]. *Adv Sci*, 2020, 7(19): 2001266.
- [53] KAMAEI S, LIU X, SAEIDI A, et al. Ferroelectric gating of two-dimensional semiconductors for the integration of steep-slope logic and neuromorphic devices[J]. *Nat Electron*, 2023, 6: 658–668.
- [54] WEN Z, WU D. Ferroelectric tunnel junctions: Modulations on the potential barrier[J]. *Adv Mater*, 2020, 32(27): 1904123.
- [55] CHEN L, WANG T Y, DAI Y W, et al. Ultra-low power $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ based ferroelectric tunnel junction synapses for hardware neural network applications[J]. *Nanoscale*, 2018, 10(33): 15826–15833.
- [56] OH S, KIM T, KWAK M, et al. HfZrO_x -based ferroelectric synapse device with 32 levels of conductance states for neuromorphic applications[J]. *IEEE Electron Device Lett*, 2017, 38(6): 732–735.
- [57] ZHURAVLEV M Y, SABIRIANOV R F, JASWAL S S, et al. Giant electroresistance in ferroelectric tunnel junctions[J]. *Phys Rev Lett*, 2005, 94(24): 246802.
- [58] MITTERMEIER B, DÖRFLER A, HOROSCHENKOFF A, et al. CMOS compatible $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ ferroelectric tunnel junctions for neuromorphic devices[J]. *Adv Intell Syst*, 2019, 1(5): 1900034.
- [59] CHERNIKOVA A G, KOZODAEV M G, NEGROV D V, et al. Improved ferroelectric switching endurance of La-doped $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ thin films[J]. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2018, 10(3): 2701–2708.
- [60] XU Y N, YANG Y, ZHAO S J, et al. Robust breakdown reliability and improved endurance in $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ ferroelectric using grain boundary interruption[J]. *IEEE Trans Electron Devices*, 2022, 69(1): 430–433.
- [61] CHEEMA S S, SHANKER N, HSU C H, et al. One nanometer HfO_2 -based ferroelectric tunnel junctions on silicon[J]. *Adv Electron Mater*, 2022, 8(6): 2270025.
- [62] CAO R R, SONG B, SHANG D S, et al. Improvement of endurance in HZO-based ferroelectric capacitor using Ru electrode[J]. *IEEE Electron Device Lett*, 2019, 40(11): 1744–1747.

Recent Progresses in Hafnia-Based Materials and Devices

DU Jianyu¹, ZHONG Hai², GE Chen^{3,4}

(1. Tianjin Key Laboratory of Quantum Optics and Intelligent Photonics, School of Science, Tianjin University of Technology, Tianjin 300384, China; 2. Ludong University, Yantai 264025, Shandong, China; 3. Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China; 4. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Extended Abstract

With the rapid development of big data, autonomous driving, and artificial intelligence technologies, competition among countries in the AI field has become increasingly fierce. Advanced AI models represented by OpenAI and DeepSeek rely on massive amounts of unstructured data (such as speech and images) for training. However, conventional computing architectures encounter limitations such as the "memory wall" and "power wall" during large-scale data computation. Therefore, breaking through the limitations of traditional architectures and exploring high-performance computing paradigms has become an urgent necessity. The efficient information processing mechanism of the human brain provides inspiration for this effort. Inspired by this, neuromorphic computing has emerged. Its core concept is based on an in-memory computing architecture, integrating data storage and computational functions within the same computational unit to reduce energy loss caused by data migration and enhance computational parallelism. It exhibits broad application potential in areas such as artificial intelligence and large-scale data analysis. Nevertheless, breakthroughs in materials and devices remain crucial for realizing high-performance neuromorphic computing systems.

Hafnia-based materials have emerged as highly promising candidates for neuromorphic computing devices due to their exceptional compatibility with complementary metal oxide semiconductor (CMOS) technology, high dielectric constants, and stable ferroelectric properties at ultrathin scales. In fact, as early as 2007, non-ferroelectric HfO₂ was widely applied in CMOS as a high-dielectric-constant (*K*) gate insulator. Therefore, the discovery of ferroelectricity in hafnia-based materials is critical for advancing CMOS compatibility with ferroelectric materials. This has also altered the conventional understanding of fluorite crystal-structured materials and opened up possibilities for realizing ferroelectricity at ultrathin scales. Subsequently, the crystal structures and origins of ferroelectricity in hafnia-based oxides were systematically studied through theoretical calculations and experimental approaches. The crystal structures of hafnia-based materials are primarily classified into two categories: polar and nonpolar. Current research indicates that their ferroelectricity primarily arises from the non-centrosymmetric orthorhombic ferroelectric phase. Furthermore, recent studies have also reported polar rhombohedral phases (*R3m* and *R3*). In fact, our recent studies have demonstrated rich phase-transition pathways between polar orthorhombic phases and nonpolar monoclinic and tetragonal phases, highlighting the structural complexity of this material. In this article, we systematically introduce various structural phase-transition techniques for hafnia-based materials, such as temperature control, doping, oxygen vacancy engineering, and stress and interface engineering methods. It should be noted that a single factor (*e.g.*, doping alone or solely oxygen vacancy modulation) might not significantly alter the phase composition of HfO₂ films; however, when doping, oxygen defect modulation, mechanical stress, and interface engineering act together, they can significantly modify the free-energy landscape, kinetically "freezing" originally non-ferroelectric equilibrium phases into metastable ferroelectric phases. Device fabrication is also crucial for realizing high-performance neuromorphic computing. Device structures such as ferroelectric RAM (FeRAMs), ferroelectric field-effect transistors (FeFETs), and ferroelectric tunneling junctions (FTJs) have demonstrated remarkable potential in neuromorphic computing applications. FeRAM devices utilize reversible polarization switching to achieve binary and multilevel memory operations, demonstrating significant potential in terms of operation speed, low power consumption, and integration density. FeFET devices, benefiting from their ultrathin ferroelectric gate layers, exhibit advantages including low power consumption, rapid switching speeds, and miniaturization capability. Similarly, FTJ devices, characterized by ultra-thin ferroelectric barriers, enable tunable tunneling resistances and non-destructive readout. These properties provide substantial benefits for neuromorphic computing applications, facilitating multilevel data storage and high-density device integration.

Summary and prospects Although significant achievements have been made in hafnia-based ferroelectric materials and their device applications, several fundamental and practical challenges persist.

The preparation of thin-film devices based on HfO₂ faces significant challenges related to electric field cycling stability. Early cycling phases experience the wake-up effect, attributed to field-induced phase changes, charge detrapping and redistribution, domain wall depinning, and reduction of depolarization fields from breakdown in nonpolar layers near electrodes. Later cycling stages suffer fatigue, indicated by a reduction in remanent polarization (*P_r*), often ending in device breakdown.

Specifically, FeFET devices encounter reliability challenges related to their metal-ferroelectric-insulator-semiconductor (MFIS) gate stack; the interfacial layer (IL), due to high permittivity and coercive fields, undergoes increased stress during polarization switching, causing premature fatigue and short retention times driven by depolarization fields. Optimizing the IL is thus crucial for improving FeFET reliability. FeRAM, despite demonstrating promising retention stability, still faces limitations in commercialization due to polarization fatigue, imprint effects, wake-up phenomena, and substantial device-to-device variability, necessitating further optimization of electrode design, composition, interface treatments, and crystallization anneals. Meanwhile, FTJs rely on ferroelectric

polarization-modulated tunneling current, with main challenges including low tunnel current due to relatively thick tunneling barriers, as well as endurance issues. Although FTJ technology holds significant potential for 3D stacking and in-memory computing, it remains at an early development stage, requiring further research to assess future applicability.

The discovery of ferroelectricity in hafnia oxide has opened numerous promising pathways in nanoelectronics, enabling significant advancements in non-volatile memories, sensors, actuators, and neuromorphic computing. Future research efforts should focus on overcoming current challenges such as material fatigue and reliability issues inherent in FeFET, FeRAM, and FTJ devices. Continuous advances in material science, device engineering, and integration technology will thus play a pivotal role in establishing hafnia-based ferroelectric materials as cornerstone components of next-generation computing platforms.

Keywords hafnia-based materials; phase-transition; ferroelectric random access memory; ferroelectric field-effect transistors; ferroelectric tunneling junctions