Физика конденсированного состояния

Научная статья
УДК 538.956
DOI: https://doi.org/10.18721/JPM.19201

ВЛИЯНИЕ РЕЖИМОВ ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ НА ПОЛЯРИЗАЦИОННЫЕ СВОЙСТВА ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ГЕТЕРОСТРУКТУР НА ОСНОВЕ ЦИРКОНАТА-ТИТАНАТА СВИНЦА

М. А. Князева ✉, Н. С. Жукова, А. Ф. Вакуленко
Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
Санкт-Петербург, Россия
✉ kniazeva.maria225@yandex.ru

Аннотация. С целью продления работоспособности устройств на основе сегнетоэлектриков, в работе впервые предложен экспериментальный подход к выяснению механизма развития поляризационной усталости в тонкой сегнетоэлектрической пленке на основе цирконата-титаната свинца. Для этого проанализировано влияние конфигурации последовательности записывающих импульсов на поляризацию выбранного объекта. При двух режимах приложения электрического поля (они различались порядком следования положительных и отрицательных импульсов) было проведено сравнение значений коэрцитивного поля (КП) и остаточной поляризации сегнетоэлектрических петель гистерезиса. Установлено, что в моменты циклических переключений изменение компонент КП незначительно, тогда как после пауз между измерениями разница между значениями КП достигала 10% и более. Эксперименты показали, что полярность завершающего импульса переключающего сигнала задает благоприятные условия для стабилизации в пленке доменов, дипольный момент которых сонаправлен с полярностью импульса, и после возобновления измерений требуется поле большей величины для изменения поляризации на противоположную.

Ключевые слова: сегнетоэлектрик, эпитаксиальная гетероструктура, поляризационная усталость, остаточная поляризация, цирконат-титанат свинца

Финансирование: Исследование выполнено при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда (Проект №24-22-00453 «Влияние эпитаксиальных натяжений на структурные переключения в антисегнетоэлектрических гетероструктурах на основе гафната свинца»).

Для цитирования: Князева М. А., Жукова Н. С., Вакуленко А. Ф. Влияние режимов переключения электрического поля на поляризационные свойства эпитаксиальных гетероструктур на основе цирконата-титаната свинца // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2026. Т. 19. № 2. С. 9–15. DOI: https://doi.org/10.18721/JPM.19201

Статья открытого доступа, распространяемая по лицензии CC BY-NC 4.0 (https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/)

Original article
DOI: https://doi.org/10.18721/JPM.19201

THE EFFECT OF ELECTRIC FIELD SWITCHING MODES ON POLARIZATION PROPERTIES OF THE LEAD ZIRCONATE-TITANATE-BASED EPITAXIAL HETEROSTRUCTURES

M. A. Kniazeva ✉, N. S. Zhukova, A. F. Vakulenko
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, St. Petersburg, Russia
✉ kniazeva.maria225@yandex.ru

© Князева М. А., Жукова Н. С., Вакуленко А. Ф., 2026. Издатель: Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого.

Abstract. In order to extend the serviceability of ferroelectric devices, this paper proposes an experimental approach (for the first time) to clearing up the mechanism of polarization fatigue development in a lead zirconate-titanate-based ferroelectric thin film. For this purpose, the influence of the recording pulse sequence configuration on the polarization of a selected object has been analyzed. The coercive field (CF) and remanent polarization of ferroelectric hysteresis loops were compared under two electric field application modes (they differed in the order of positive and negative pulses). The change in CF components was found to be insignificant during cyclic switching, whereas the difference between CF values reached 10% or more after pauses between the measurements. Experiments showed that the polarity of the final pulse of the switching signal set favorable conditions for stabilizing domains in the film whose dipole moment was aligned with the pulse polarity, and after resuming the measurements, a field of higher intensity was required to reverse the polarization.

Keywords: ferroelectric, epitaxial thin film, polarization fatigue, remanent polarization

Funding: The reported study was funded by Russian Science Foundation (Project No. 24-22-00453 "The effect of epitaxial strain on the structure switching in the antiferroelectric heterostructures based on lead hafnate").

For citation: Kniazeva M. A., Zhukova N. S., Vakulenko A. F., The effect of electric field switching modes on polarization properties of the lead zirconate-titanate-based epitaxial heterostructures, St. Petersburg State Polytechnical University Journal. Physics and Mathematics. 19 (2) (2026) 9–15. DOI: https://doi.org/10.18721/JPM.19201

This is an open access article under the CC BY-NC 4.0 license (https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/)

Введение

Конденсаторы на основе тонких пленок сегнетоэлектриков (СЭ) являются объектами интереса многих исследователей ввиду обширности области их использования. В частности, на основе сегнетоэлектриков реализована концепция энергонезависимой памяти (*англ.* Ferromagnetic Random Access non-volatile Memory (FeRAM)), сочетающей в себе высокое быстродействие оперативной памяти и возможность сохранения данных при отключении питания [1, 2]. Запись информации в таких устройствах осуществляется путем приложения импульсов определенной полярности: при подаче импульса отрицательной полярности в ячейке памяти реализуется состояние, соответствующее логическому нулю («0»), а в случае приложения импульса положительной полярности – логической единице («1»). Ключевая особенность таких приборов – это их основа: они изготавливаются из сегнетоэлектрических материалов, которые обеспечивают быстрое переключение поляризации и возможность хранения информации без постоянного источника питания.

Однако одной из главных проблем, препятствующих коммерциализации устройств, созданных из сегнетоэлектриков, выступает поляризационная усталость, т. е. снижение величины остаточной поляризации при большом количестве циклов записи. Из-за такой усталости, состояния, соответствующие логическим «0» и «1», становятся менее различимыми.

Этот феномен находился в центре внимания многих исследователей; согласно их результатам, были предложены возможные причины поляризационной усталости. Согласно работе [3], основные механизмы развития указанного явления заключаются в ингибировании зародышей доменов и «замерзании» доменных стенок в кристалле СЭ. Помимо выявления механизмов, приводящих к усталости сегнетоэлектриков, множество работ посвящено анализу влияющих факторов: материалов конденсатора и электродов [4 – 6], рабочей температуры [7], размерных эффектов [8], параметров прикладываемого поля [9] и других. Тем не менее, на сегодняшний день многие вопросы как фундаментального, так и прикладного характера не имеют однозначного ответа.

Цель настоящего исследования – найти эффективный подход, позволяющий решить проблему продления работоспособности устройств на основе сегнетоэлектриков; подход, который бы дал ключ к механизму развития поляризационной усталости сегнетоэлектрика.

© Kniazeva M. A., Zhukova N. S., Vakulenko A. F., 2026. Published by Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University.

Пробный подход к решению проблемы

Предлагаемый подход к выявлению механизма поляризационной усталости выбранного объекта исследования – тонкой СЭ-пленки на основе цирконата-титаната свинца – применяется впервые. Нами была поставлена задача экспериментально оценить влияние конфигурации последовательности записывающих импульсов на поляризационные свойства указанной пленки. Для этого на каждой итерации измерений к пленке прикладывалось напряжение в виде последовательности из двух пар треугольных импульсов с положительной и отрицательной полярностью. Нам было необходимо выяснить, как изменяются со временем коэрцитивное поле и остаточная поляризация при использовании двух различных режимов следования импульсов.

В первом случае сначала к пленке прикладывалась пара положительных импульсов, а затем пара отрицательных.

Во втором случае последовательность пар импульсов была противоположной.

Наблюдение осуществляли за двумя параметрами СЭ-петель гистерезиса, регистрируемыми на каждом цикле записи: модулями остаточной поляризации $|\mathbf{P}_r|$ и коэрцитивного поля $|\mathbf{E}_c|$.

Остаточная поляризация $\mathbf{P}_r$ – это векторная величина, сохраняющая свое значение в сегнетоэлектрическом конденсаторе после снятия электрического поля; ее изменение при многократном приложении поля характеризует поляризационную усталость материала.

Коэрцитивное поле $\mathbf{E}_c$ соответствует такому значению электрического поля, которое необходимо приложить к кристаллу для смены знака поляризации на противоположный.

По результатам измерений были построены зависимости положительной и отрицательной компонент $\mathbf{E}_c$ и $\mathbf{P}_r$ от количества циклов записи при различных режимах следования импульсов.

Анализ полученных зависимостей позволяет судить о влиянии режима следования импульсов на процессы, происходящие в СЭ-пленке.

Методическая часть

Приготовление образцов. В качестве объекта исследования была выбрана эпитаксиальная гетероструктура $PbZr_{0,3}Ti_{0,7}O_3/LaSr_{0,7}Mn_{0,3}O_3$ (PZT/LSMO), выращенная на подложке $SrTiO_3$ (STO) методом импульсного лазерного осаждения. Толщина слоев PZT и LSMO (последний выполняет роль нижнего электрода) составляла 60 и 50 нм, соответственно. Более подробно технология изготовления пленки описана в работе [10], где эта процедура изложена для аналогичного образца. На пленку наносились золотые электроды толщиной 60 нм (рис. 1, *а*). Чтобы улучшить адгезионные свойства контакта, между пленкой и электродами был нанесен промежуточный слой хрома толщиной 4,8 нм.

Детализация измерений. Амплитуда и длительность прикладываемых треугольных импульсов управляющего поля составляли ±8 В и 0,02 с, соответственно. Выбор треугольной формы импульса продиктован результатами работы [11], согласно которым использование таких записывающих импульсов наиболее благоприятно в случае медленных измерений.

Измерения проводились группами по 50 циклов с паузами между циклами 2 мин. На первом этапе исследования была поставлена задача изучить поляризационные свойства СЭ-пленки при небольшом количестве циклов переключения (порядка 10^3 циклов записи), чтобы сконцентрировать внимание на поведении пленки в отсутствие признаков усталости [3].

На каждом цикле записи регистрировалась петля СЭ-гистерезиса при использовании метода Сойера – Тауэра [12]. Суть метода заключается в измерении заряда эталонного конденсатора, включенного последовательно с образцом. Схема измерений была модифицирована в рамках метода двойной волны [13, 14] с целью устранения диэлектрического и электропроводного вкладов, которые могли бы привести к некорректной интерпретации результатов. На рис. 1, *b* представлен пример записи петли гистерезиса, получаемой при каждом цикле, а также подход к определению параметров векторов $\mathbf{P}_r$ и $\mathbf{E}_c$.

Положительная (E_c^+) и отрицательная (E_c^-) компоненты коэрцитивного поля $\mathbf{E}_c$ определяются как значение электрического поля, при котором достигается остаточная поляризация, равная половине значения соответствующих компонент $\mathbf{P}_r$ (P_r^+ и P_r^-).

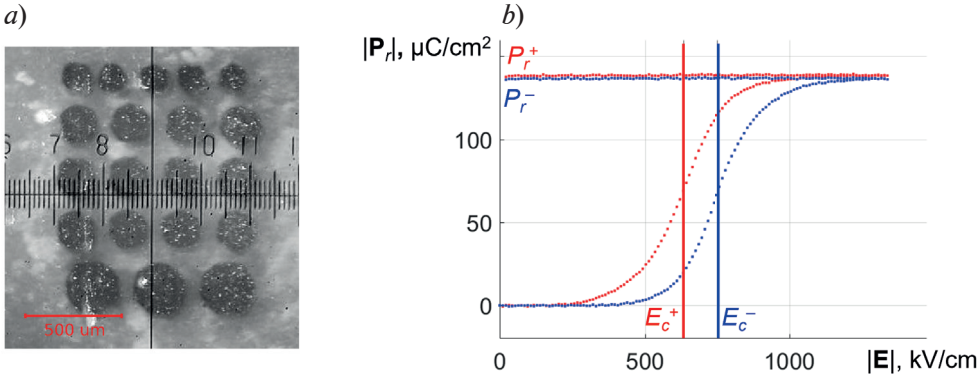


Рис. 1. Фотография электродов, нанесенных на пленку (*a*), и пример петли гистерезиса сегнетоэлектрика, измеряемой при каждом цикле записи (*b*);
P_r^+, P_r^- – компоненты остаточной поляризации; E_c^+, E_c^- – компоненты коэрцитивной силы

Результаты и их обсуждение

На рис. 2 представлен график зависимости компонент коэрцитивного поля от количества циклов записи N в двух режимах следования импульсов. Вертикальной пунктирной линией на рисунке обозначен момент перехода от одного режима к другому. На зависимостях четко видны различия измерительных серий, которые соответствуют отдельным группам, включающим по 50 циклов записи. Для обоих режимов следования записывающих импульсов характерно несущественное изменение значений компонент E_c^+ и E_c^- в моменты циклических переключений, тогда как после пауз между измерениями наблюдаются скачки величины $|\mathbf{E}|$; при этом амплитуда скачков может достигать десяти и более процентов от исходных значений.

Анализ зависимости $|\mathbf{E}_c|(N)$ позволяет утверждать, что влияние режима следования импульсов на значения E_c выражается в корреляции между полярностью последнего приложенного импульса и амплитудой скачка величины E_c после паузы между измерениями.

Если новой группе измерений предшествовала серия переключений, которые завершались импульсами отрицательной полярности, то после паузы амплитуда E_c^+ заметно возрастала, в то время как амплитуда E_c^- снижалась, и наоборот.

Если принять во внимание физический смысл коэрцитивной силы E_c, то можно интерпретировать это наблюдение следующим образом: полярность завершающего записывающего импульса задает такие условия, при которых в кристалле сегнетоэлектрика стабилизируются домены с ориентацией дипольных моментов, которая совпадает с направлением импульса.

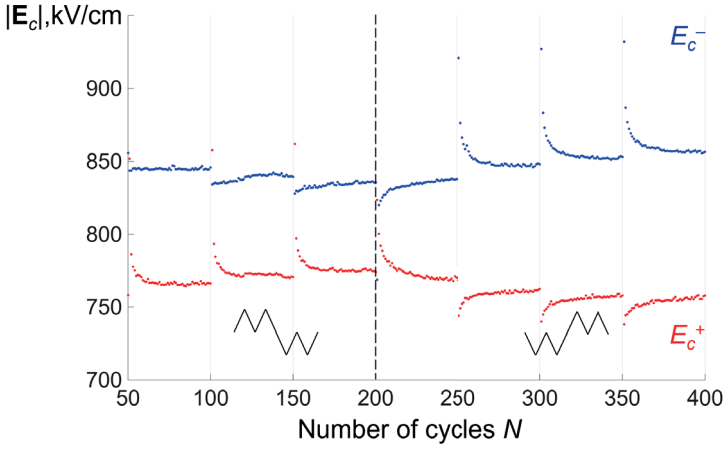


Рис. 2. График зависимости компонент коэрцитивной силы $\mathbf{E}_c$ от количества циклов записи в двух режимах следования импульсов
(вертикальным пунктиром показана граница между режимами)

На рис. 3 представлен график зависимости компонент остаточной поляризации $\mathbf{P}_r$ от количества циклов записи. Как и на рис. 2, на этом графике хорошо различимы экспериментальные точки, относящиеся к отдельным группам переключений, а паузы между переключениями сопровождаются преимущественно незначительными падениями величины $|\mathbf{P}_r|$. Однако в отличие от зависимости $|\mathbf{E}_c|(N)$, изменение режима следования записывающих импульсов с «два положительных – два отрицательных» на «два отрицательных – два положительных» качественно не влияет на характер зависимости $|\mathbf{P}_r|(N)$.

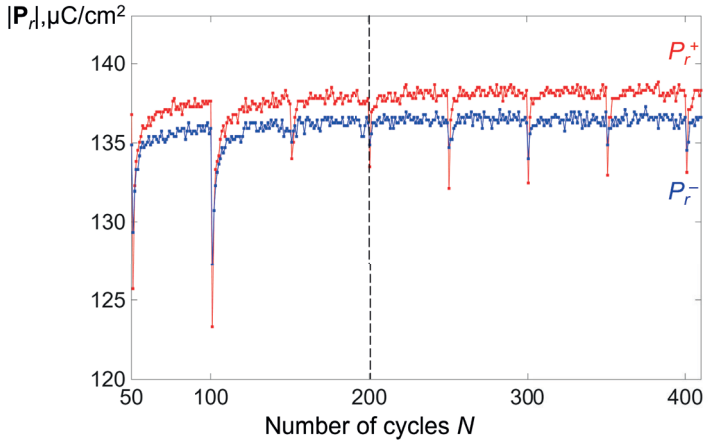


Рис. 3. График зависимости компонент остаточной поляризации $\mathbf{P}_r$ от количества циклов записи в двух режимах следования импульсов

Заключение

Идея данного исследования состояла в том, чтобы оценить, как конфигурация переключающих импульсов влияет на остаточную поляризацию и значение коэрцитивного поля в тонкой эпитаксиальной пленке на основе цирконата-титаната свинца. Анализ результатов показал, что при многократной записи полярность последнего импульса, приложенного к пленке, влияет на скачок $|\mathbf{E}_c|$ и тем самым задает благоприятные условия для стабилизации в ней доменов, дипольный момент которых сонаправлен с полярностью импульса. При этом не было обнаружено каких-либо корреляций между полярностью указанного импульса и знаком остаточной поляризации после возобновления измерений.

Подход, предложенный в настоящей статье, планируется доработать. В качестве одного из направлений дальнейшего развития этого подхода можно выделить постепенное приближение параметров записи к таковым, которые практически используются в устройствах хранения данных, а именно – следует увеличить количество циклов записи и снизить длительность импульсов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Scott J. F., Kammerdiner L., Parris M., Traynor S., Ottenbacher V., Shawabkeh A., Oliver W. F.** Switching kinetics of lead zirconate titanate submicron thin-film memories // Journal of Applied Physics. 1988. Vol. 64. No. 2. Pp. 787–792.

2. **Scott J. F.** Applications of modern ferroelectrics // Science. 2007. Vol. 315. No. 5814. Pp. 954–959.

3. **Tagantsev A. K., Stolichnov I., Colla E. L., Setter N.** Polarization fatigue in ferroelectric films: Basic experimental findings, phenomenological scenarios, and microscopic features // Journal of Applied Physics. 2001. Vol. 90. No. 3. Pp. 1387–1402.

4. **Auciello O., Gifford K. D., Lichtenwalner D. J., Dat R., Al-Shareef H. N., Bellur K. R., Kincon A. I.** A review of composition-structure-property relationships for PZT-based heterostructure capacitors // Integrated Ferroelectrics. 1995. Vol. 6. No. 1–4. Pp. 173–187.

5. **Nakamura T., Nakao Y., Kamisawa A., Takasu H.** Preparation of $Pb(Zr,Ti)O_3$ thin films on Ir and IrO_2 electrodes // Japanese Journal of Applied Physics. 1994. Vol. 33. No. 9S. Pp. 5207–5210.

6. **Bornand V., Trolier-McKinstry S., Takemura K., Randall C. A.** Orientation dependence of fatigue behavior in relaxor ferroelectric–$PbTiO_3$ thin films // Journal of Applied Physics. 2000. Vol. 87. No. 8. Pp. 3965–3972.

7. **Taylor D. J., Larsen P. K., Dormans G. J. M., de Vierman A. E. M.** Pulse switching characterization of organometallic chemical vapor deposited $PbZr_xTi_{1-x}O_3$ thin films for high-density memory applications // Integrated Ferroelectrics. 1995. Vol. 7. No. 1–4. Pp. 123–138.

8. **Lee J. J., Thio C. L., Desu S. B.** Electrode contacts on ferroelectric $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$ and $SrBi_2Ta_2O_9$ thin films and their influence on fatigue properties // Journal of Applied Physics. 1995. Vol. 78. No. 8. Pp. 5073–5078.

9. **Jin L., Li F., Zhang S.** Decoding the fingerprint of ferroelectric loops: Comprehension of the material properties and structures // Journal of the American Ceramic Society. 2014. Vol. 97. No. 1. Pp. 1–27.

10. **Andreeva N. V., Vakulenko A. F., Petraru A., Soni R., Kohistedt H., Filimonov A. V., Rudskoy A. I., Vakhrushev S. B., Pertsev N. A.** Low-temperature dynamics of ferroelectric domains in $PbZr_{0.3}Ti_{0.7}O_3$ epitaxial thin films studied by piezoresponse force microscopy // Applied Physics Letters. 2015. Vol. 107. No. 15. P. 152904.

11. **Colla E. L., Taylor D. V., Tagantsev A. K., Setter N.** Discrimination between bulk and interface scenarios for the suppression of the switchable polarization (fatigue) in $Pb(Zr,Ti)O_3$ thin films capacitors with Pt electrodes // Applied Physics Letters. 1998. Vol. 72. No. 19. Pp. 2478–2480.

12. **Sawyer C. B., Tower C. H.** Rochelle salt as a dielectric // Physical Review. 1930. Vol. 35. No. 3. Pp. 269–273.

13. **Fukunaga M., Noda Y.** New technique for measuring ferroelectric and antiferroelectric hysteresis loops // Journal of the Physical Society of Japan. 2008. Vol. 77. No. 6. P. 064706.

14. **Fukunaga M., Noda Y.** Improvement of the double-wave method for ferroelectric hysteresis loops and its application to multiferroic $EuMn_2O_5$ // Journal of the Korean Physical Society. 2009. Vol. 55. No. 2 (Part 1). Pp. 888–892.

REFERENCES

1. **Scott J. F., Kammerdiner L., Parris M., et al.,** Switching kinetics of lead zirconate titanate submicron thin-film memories, J. Appl. Phys. 64 (2) (1988) 787–792.

2. **Scott J. F.,** Applications of modern ferroelectrics, Science. 315 (5814) (2007) 954–959.

3. **Tagantsev A. K., Stolichnov I., Colla E. L., Setter N.,** Polarization fatigue in ferroelectric films: Basic experimental findings, phenomenological scenarios, and microscopic features, J. Appl. Phys. 90 (3) (2001) 1387–1402.

4. **Auciello O., Gifford K. D., Lichtenwalner D. J., et al.,** A review of composition-structure-property relationships for PZT-based heterostructure capacitors, Integr. Ferroelectr. 6 (1–4) (1995) 173–187.

5. **Nakamura T., Nakao Y., Kamisawa A., Takasu H.,** Preparation of $Pb(Zr,Ti)O_3$ thin films on Ir and IrO_2 electrodes, Jpn. J. Appl. Phys. 33 (9S) (1994) 5207–5210.

6. **Bornand V., Trolier-McKinstry S., Takemura K., Randall C. A.,** Orientation dependence of fatigue behavior in relaxor ferroelectric–$PbTiO_3$ thin films, J. Appl. Phys. 87 (8) (2000) 3965–3972.

7. **Taylor D. J., Larsen P. K., Dormans G. J. M., de Vierman A. E. M.,** Pulse switching characterization of organometallic chemical vapor deposited $PbZr_xTi_{1-x}O_3$ thin films for high-density memory applications, Integr. Ferroelectr. 7 (1–4) (1995) 123–138.

8. **Lee J. J., Thio C. L., Desu S. B.,** Electrode contacts on ferroelectric $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$ and $SrBi_2Ta_2O_9$ thin films and their influence on fatigue properties, J. Appl. Phys. 78 (8) (1995) 5073–5078.

9. **Jin L., Li F., Zhang S.,** Decoding the fingerprint of ferroelectric loops: Comprehension of the material properties and structures, J. Am. Ceram. Soc. 97 (1) (2014) 1–27.

10. **Andreeva N. V., Vakulenko A. F., Petraru A., et al.,** Low-temperature dynamics of ferroelectric domains in $PbZr_{0.3}Ti_{0.7}O_3$ epitaxial thin films studied by piezoresponse force microscopy, Appl. Phys. Lett. 107 (15) (2015) 152904.

11. **Colla E. L., Taylor D. V., Tagantsev A. K., Setter N.,** Discrimination between bulk and interface scenarios for the suppression of the switchable polarization (fatigue) in $Pb(Zr,Ti)O_3$ thin films capacitors with Pt electrodes, Appl. Phys. Lett. 72 (19) (1998) 2478–2480.

12. **Sawyer C. B., Tower C. H.,** Rochelle salt as a dielectric, Phys. Rev. 35 (3) (1930) 269–273.

13. **Fukunaga M., Noda Y.,** New technique for measuring ferroelectric and antiferroelectric hysteresis loops, J. Phys. Soc. Jpn. 77 (6) (2008) 064706.

14. **Fukunaga M., Noda Y.,** Improvement of the double-wave method for ferroelectric hysteresis loops and its application to multiferroic $EuMn_2O_5$, J. Korean Phys. Soc. 55 (2(1)) (2009) 888–892.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

КНЯЗЕВА Мария Александровна – *кандидат физико-математических наук, доцент Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия.*
195251, Россия, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
kniazeva.maria225@yandex.ru
ORCID: 0000-0003-1120-2102

ЖУКОВА Наталья Сергеевна – *студентка Института электроники и телекоммуникаций Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия.*
195251, Россия, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
zhukovaaa3781@gmail.com

ВАКУЛЕНКО Александр Феликсович – *кандидат физико-математических наук, старший преподаватель Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия.*
195251, Россия, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
sasha705@mail.ru
ORCID: 0000-0001-5541-3409

THE AUTHORS

KNIAZEVA Maria A.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia
kniazeva.maria225@yandex.ru
ORCID: 0000-0003-1120-2102

ZHUKOVA Natalia S.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia
zhukovaaa3781@gmail.com

VAKULENKO Aleksandr F.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia
sasha705@mail.ru
ORCID: 0000-0001-5541-3409

Статья поступила в редакцию 04.12.2025. Одобрена после рецензирования 08.12.2025. Принята 08.12.2025.
Received 04.12.2025. Approved after reviewing 08.12.2025. Accepted 08.12.2025.