

КОМПЬЮТЕРНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ НЕОДНОРОДНОСТЕЙ ВЫСОКООМНОГО СЛОЯ НА РЕЗИСТИВНЫЕ ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ В СТРУКТУРЕ НА ОСНОВЕ МИКРОКРИСТАЛЛА СЕЛЕНИДА ВИСМУТА

© 2023 г. В. В. Сироткин*

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт проблем микроэлектроники и органических материалов Российской академии наук, ул. Академика Осипяна, 6, г. Черноголовка, Московская область, 142432 Россия

*E-mail: sirotkin@iptm.ru

Поступила в редакцию 12.04.2023 г.

После доработки 10.07.2023 г.

Принята к публикации 10.07.2023 г.

В статье продолжен анализ результатов экспериментальных исследований резистивных переключений в структуре на основе микрокристалла (“чешуйки”) селенида висмута. Ранее с помощью моделирования было продемонстрировано, что как наличие у исследуемой структуры нескольких высокорезистивных состояний, так и особенности переходов в эти состояния, могут быть объяснены специфическим поведением многочисленных проводящих каналов, пронизывающих поверхностный высокоомный (дефектный) слой. Источниками зарождения этих каналов полагались нановыступы на прижимном управляющем серебряном электроде, внедренные в поверхностный слой. В данном исследовании показано, что дополнительными источниками каналов могут служить объемные неоднородности поверхностного слоя — нановключения, отличающиеся более высокой проводимостью. Сравнение результатов моделирования подтвердило, что поведение каналов, формирующихся вблизи таких неоднородностей, подобно поведению каналов, растущих от металлических нановыступов.

Ключевые слова: мемристор, резистивные переключения, селенид висмута, компьютерное моделирование

DOI: 10.31857/S0544126923700473, EDN: STIQYL

1. ВВЕДЕНИЕ

Селенид висмута (Bi_2Se_3) хорошо известен в качестве топологического изолятора. Однако, в последнее время была продемонстрирована возможность создания на его основе мемристивных структур. Так в работах [1–4] были исследованы свойства планарных мемристивных структур на основе монокристаллов и тонких пленок Bi_2Se_3 .

В работе [5] была рассмотрена мемристивная структура, представляющая собой микрокристалл (“чешуйку”) селенида висмута, зажатый между микроострием серебряной проволоки и широким медным основанием. “Чешуйка” была получена с помощью “скотчевой” технологии (шелушения) монокристалла Bi_2Se_3 . Селенид висмута — слоистый материал, который составлен из квинтупла (quintuple) $\text{Se}-\text{Bi}-\text{Se}-\text{Bi}-\text{Se}$ толщиной ~ 1 нм, соединенных между собой слабой вандер-ваальсовой связью. Использованный в [5] микрокристалл имел толщину ~ 600 нм. В построенной на его основе структуре переключения между высокорезистивными и низкорезистивными со-

стояниями (далее ВРС и НРС, соответственно) регистрировались при подаче пилообразного напряжения с максимальным размахом амплитуды ± 0.8 В. Была продемонстрирована возможность получения нескольких хорошо разделимых и стабильных ВРС путем варьирования амплитуды положительной части “пилы”. При этом в ходе экспериментов были выявлены некоторые особенности переходов из НРС в ВРС, важные с точки зрения возможного применения структуры в нейроморфных цепях. В частности оказалось, что:

- увеличения сопротивление структуры (R) начинается после достижения некоторого порогового напряжения;
- как при нарастании положительного сигнала, так и при его убывании происходит плавный рост R ;
- скорость роста R на ниспадающем участке “пилы” зависит от максимального значения, достигнутого управляющим сигналом.

В статье [6] для теоретического анализа этих особенностей было проведено компьютерное моделирование. Оно, как и в более ранних работах

[3–5, 7], было основано на предположении, что резистивные переключения в структурах на Bi_2Se_3 , обусловлены формированием или разрушением проводящих (перколяционных) каналов через тонкий поверхностный (дефектный) слой, более высокоомный, чем объемный материал. Эти каналы возникают в зонах с сильным локальным повышением напряженности электрического поля. Изменения в состоянии каналов происходят, скорее всего, под действием эффекта Пул–Френкеля и электродиффузии ионов селена. Кроме того, в [6] предполагалось, что основными источниками проводящих каналов в рассматриваемом случае могут быть многочисленные нановыступы на серебряном электроде, внедренные в поверхностный слой. В рамках принятых предположений было показано, что как наличие у исследуемой структуры нескольких ВРС, так и особенности переходов в эти состояния, могут быть объяснены спецификой процесса разрушения проводящих каналов, выявленной при моделировании.

В данной работе в качестве дополнительных источников для возникновения проводящих каналов в структуре из [5] рассматриваются объемные неоднородности поверхностного слоя – нановключения, обладающие более высокой проводимостью. Причиной возникновения таких неоднородностей могут служить, например, атомы внедрения в ван-дер-ваальсовы промежутки [8, 9]. Для моделирования поведения каналов, формирующихся вблизи неоднородностей, была использована методика, аналогичная [6, 7].

2. МЕТОДИКА МОДЕЛИРОВАНИЯ

Как и в других статьях, которые посвящены исследованию образования и разрушения проводящих каналов в структурах на Bi_2Se_3 (см. [3, 4, 6, 7]), в данной работе применялась модель “критического поля” (МКП), изначально предложенная в [10, 11].

Согласно МКП образование или разрушение каналов происходит в тех областях поверхностного слоя, где напряженность электрического поля достигает некоторого критического значения E_c . В зависимости от знака управляющего напряжения удельная проводимость таких областей либо повышается до величины, соответствующей НРС, либо возвращается к исходному низкому значению. Модель построена на уравнении растекания тока, связывающем в рассматриваемой структуре распределение удельной проводимости с распределением электрического потенциала. Ход резистивных переключений в модели отслеживается пошагово. На каждом шаге текущее распределение удельной проводимости используется для расчета распределения электрического потенциала с помощью указанного уравнения. Затем, если в структуре об-

наруживаются области, в которых согласно правилам модели значение удельной проводимости изменилось, то происходит переход к следующему шагу. А если это не так, то процесс переключения считается завершенным.

Для удобства сравнения с результатами, полученными в [6], при моделировании использовались те же значения параметров: диаметр управляющего электрода – 100 мкм; толщина структуры (z_s) – 600 нм; толщина поверхностного слоя (z_L) – 32 нм; величина критической напряженности электрического поля E_c в МКП – 2×10^5 В/см; удельное сопротивление объемного Bi_2Se_3 – 1.4×10^{-3} Ом см; удельное сопротивление поверхностного слоя (ρ_L) – 5×10^3 Ом см. Удельное сопротивление проводящих каналов (ρ_{cc}) было переменным. Соотношение $\delta_{cc} = \rho_L / \rho_{cc}$ при расчетах могло равняться 50, 100, 200 или 400. Это отражало тот факт, что в поверхностном слое, являющемся дефектным, могут формироваться каналы с разной проводимостью.

Для того, чтобы при моделировании можно было однозначно выявить зависимость характеристик резистивных переключений от входных параметров, нановключения полагались идентичными и распределенными равномерно по всей области под управляющим электродом. Минимальное расстояние между соседними нановключениями было равно $3z_L$, чтобы избежать их взаимного влияния при переключениях. Эти предположения, как и в [6], позволили перейти от анализа всей структуры к моделированию “элементарной” ячейки с размерами $3z_L \times 3z_L \times z_s$.

При расчетах к верхней грани “элементарной” ячейки прикладывалось управляющее напряжение. Нижняя грань было заземлена. На боковых гранях задавались условия зеркальной симметрии. Тестируемое нановключение располагалось в позиции ζ_I ($0 > \zeta_I > -z_L$) на прямой, проходящей через центр ячейки вдоль оси z .

При моделировании рассматривались нановключения четырех размеров: три кубических с длиной ребра 1, 2 и 3 нм, а также одно в форме прямоугольного параллелепипеда объемом $1 \times 1 \times 2$ нм³. Эти нановключения далее для краткости обозначаются, соответственно, I1, I2, I3 и I4.

Резистивные переключения моделировались при следующих напряжениях: при переходах “элементарной” ячейки из исходного состояния (ИС) или ВРС в НРС – $U_{НРС} = -0.4$ В, при переходе из НРС в ВРС – $U_{ВРС} = 0.4$ В. Использование иных напряжений при расчете в дальнейшем изложении всегда специально оговаривается.

Моделирование выполнялось с помощью компьютерной программы, аналогичной программам из [6, 7].

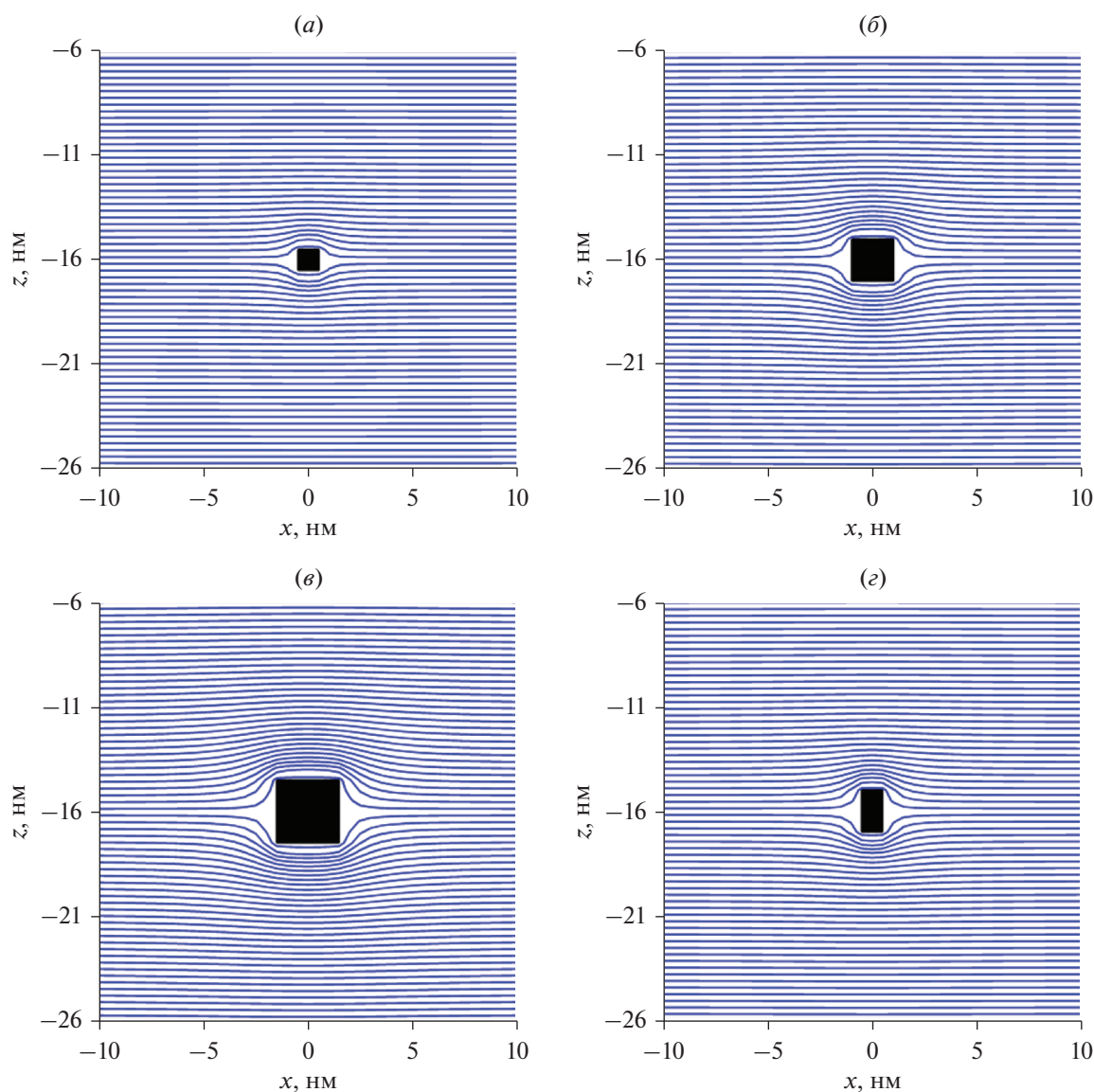


Рис. 1. (а)–(г) Распределения электрического потенциала вблизи нановключений I1–I4, соответственно. Распределения получены для ИС “элементарной” ячейки при $U_{\text{НРС}} = -0.4$ В, $\delta_{cc} = 400$ и $\zeta_I = -16$ нм. Представлено сечение XZ , проходящее через центр нановключений. Эквипотенциалы проведены с шагом $U_{\text{НРС}}/100$.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 приведены распределения электрического потенциала вблизи нановключений для “элементарной” ячейки в ИС при $U_{\text{НРС}} = -0.4$ В, $\delta_{cc} = 400$ и $\zeta_I = -16$ нм. Видно, что зоны с сильным локальным повышением напряженности электрического поля формируются вблизи граней нановключений, перпендикулярных оси z . При этом, чем больше размер нановключения в направлении данной оси, тем большие значения напряженности реализуются в этих зонах (на рисунке это соответствует большому сгущению эквипотенциалов). Следует отметить, что при указанных

значениях параметров напряженность электрического поля достигает критической величины E_C лишь в окрестностях I2, I3 и I4. Для запуска процесса формирования проводящего канала от I1 при $\delta_{cc} = 400$ и $\zeta_I = -16$ нм требуется напряжение $U_{\text{НРС}}$ равное -0.415 В.

На рис. 2а и 2б показан проводящий канал, сформировавшийся после перехода из ИС в НРС “элементарной” ячейки с нановключением I2 при $\delta_{cc} = 400$ и $\zeta_I = -16$ нм. Представлены трехмерная проекция канала и его двумерное сечение плоскостью XZ , проходящей через середину нановключения. На сечении отображены основные этапы развития проводящего канала (шаги в рам-

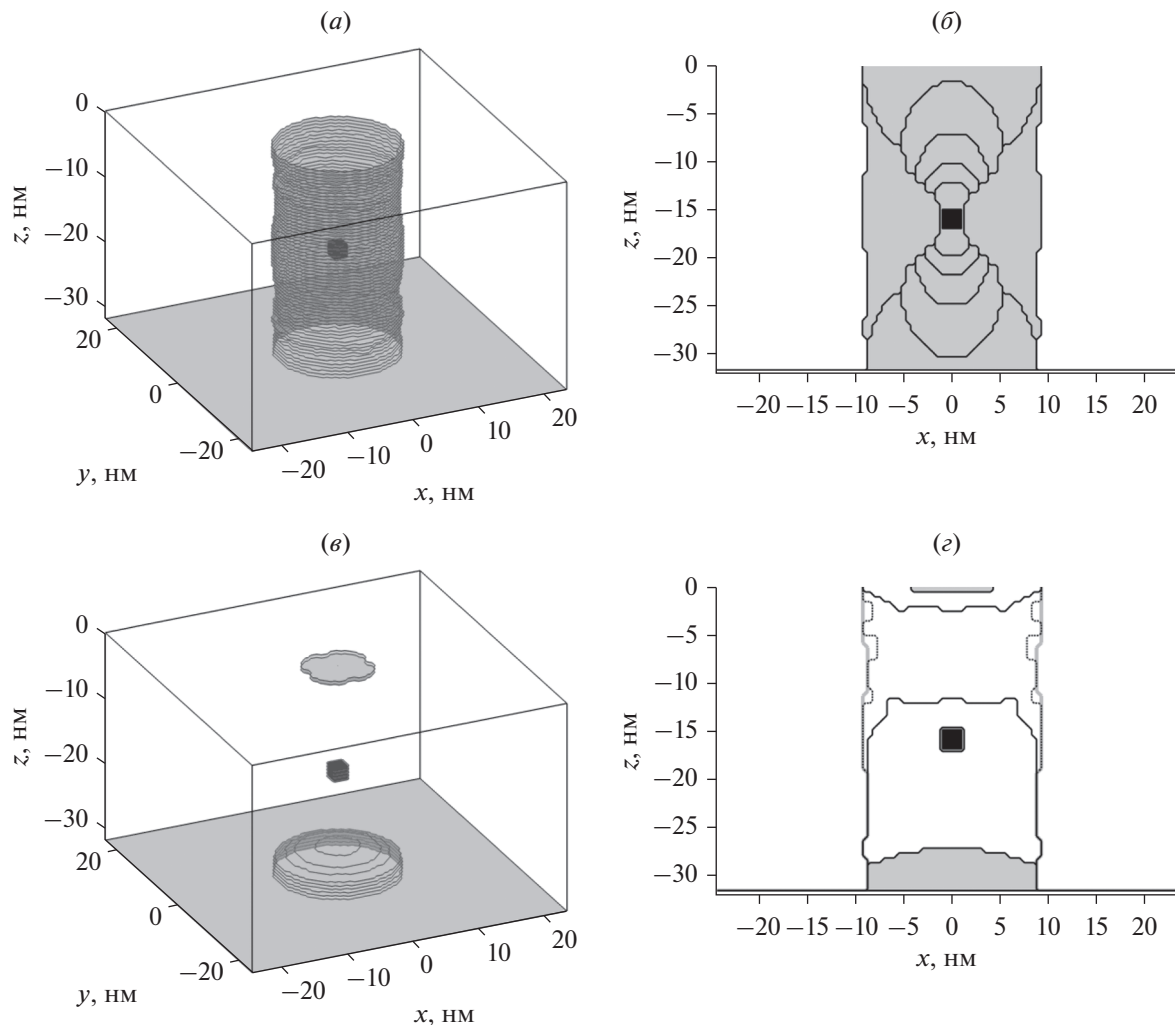


Рис. 2. Результаты моделирования для нановключения I2 при $\delta_{cc} = 400$ и $\zeta_I = -16$ нм. Вверху — вид проводящего канала после перехода “элементарной” ячейки из ИС в НРС, внизу — после последующего перехода в ВРС. Слева — трехмерные проекции проводящего канала, справа — его двумерные сечения плоскостью XZ , проходящей через середину нановключения. См. также дополнительные пояснения в тексте.

ках МКП). Видно, что канал, зарождаясь у нановключения, растет, расширяясь и продвигаясь одновременно к верхней и нижней границам поверхностного слоя. После соединения с границами канал утолщается в своей средней части. Конечный вид канала близок к цилиндру с радиусом порядка 9 нм. Таким образом, как и в случае каналов от нановыступов на металлическом контакте, рассмотренных в [6], поперечный размер образовавшегося канала значительно превосходит размеры нановключения.

Изменение формы проводящего канала, образующегося при $\zeta_I = -16$ нм и разных сочетаниях значений δ_{cc} и размеров нановключений, демонстрирует рис. 3. Как следует из рисунка, варьирование размеров нановключений вызывает некоторое изменение формы верхней и нижней частей канала, но мало сказывается на его поперечном

размере. А уменьшение δ_{cc} приводит к утонению канала, особенно заметному при малых значениях этого параметра. Очевидной причиной утонения является то, что при уменьшении δ_{cc} (т.е. при росте сопротивления канала и, соответственно, увеличении падения напряжения на нем) происходит снижение значений напряженности электрического поля вблизи канала и, как следствие, сокращение размеров зон с сильным локальным повышением напряженности.

Влияние на процесс роста проводящего канала позиции нановключения I2 относительно границ поверхностного слоя показано на рис. 4. Сопоставляя этот рисунок с рис. 2б, можно заключить, что по мере смещения нановключения от центра поверхностного слоя к его нижней границе размеры и форма канала претерпевают существенные изменения. Видно, что при $\zeta_I = -24$ нм (рис. 4б) об-

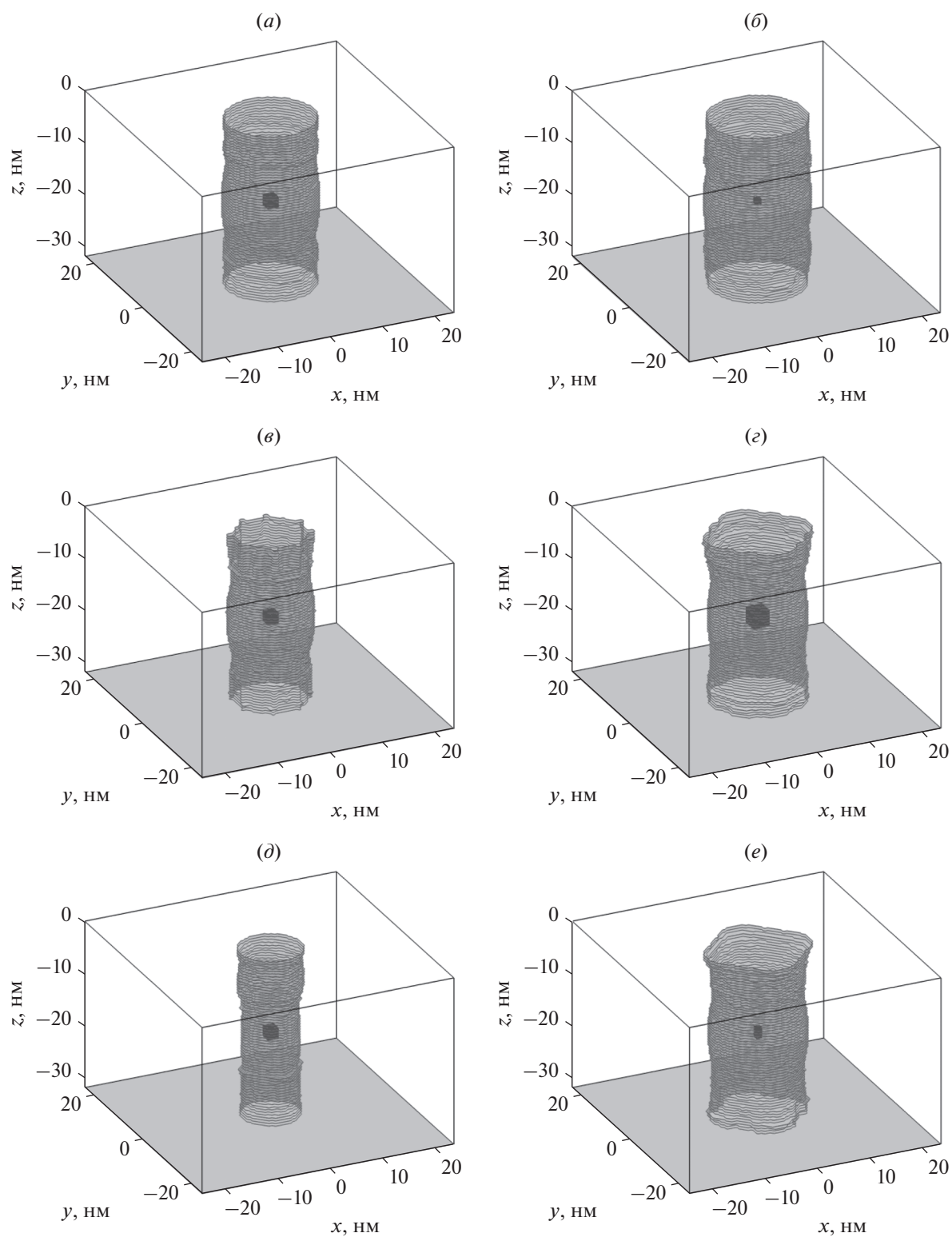


Рис. 3. Вид проводящего канала, сформировавшегося при переходе “элементарной” ячейки из ИС в НРС при $\zeta_I = -16$ нм и разных сочетаниях значений δ_{cc} и размеров нановключений. Слева – варианты для 12 при δ_{cc} равном: (а) 200, (б) 100 и (в) 50. Справа – варианты при $\delta_{cc} = 400$ с нановключениями: (б) 11 ($U_{НРС} = -0.415$ В), (з) 13, (е) 14.

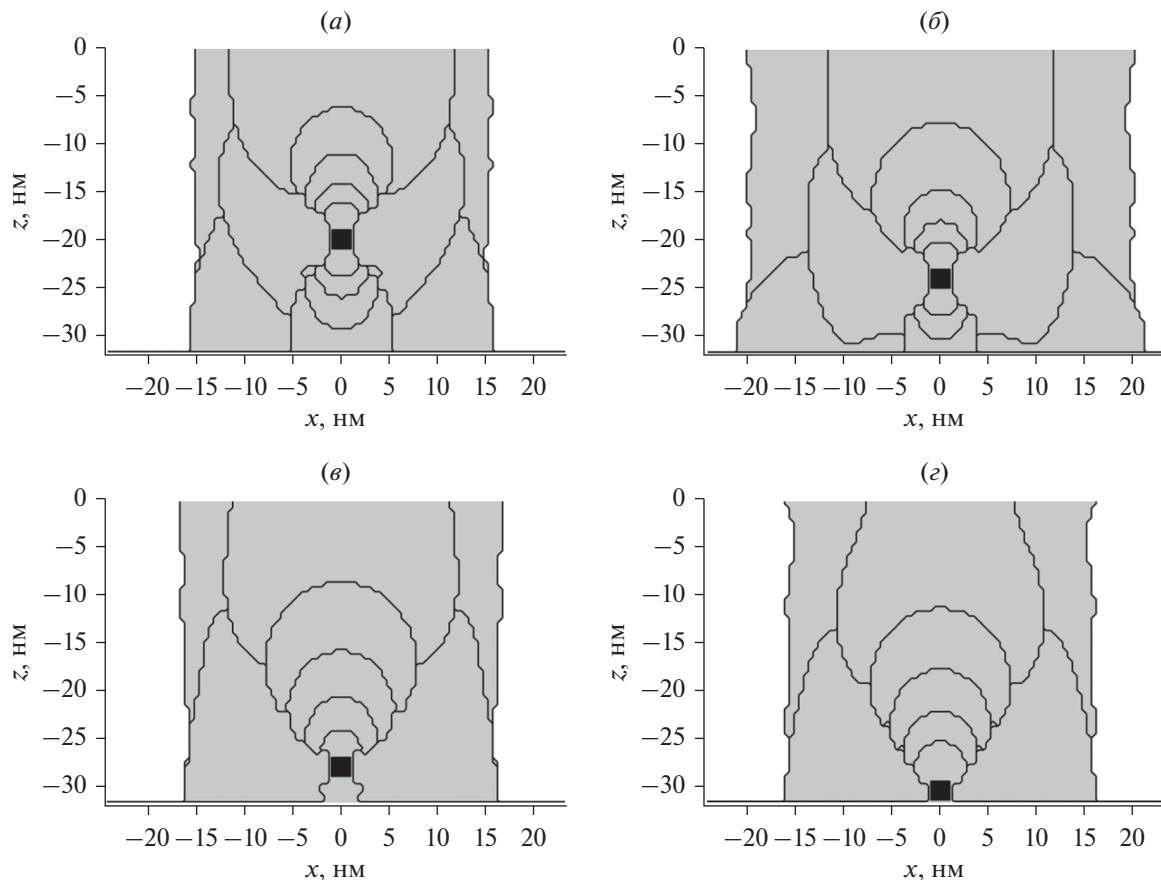


Рис. 4. Эволюция проводящего канала при переходе “элементарной” ячейки из ИС в НРС в случае нановключения I2 при $\delta_{cc} = 400$ и разных значений ζ_f : (а) -20 нм, (б) -24 нм, (в) -28 нм, (г) -31 нм.

разовавшийся канал заметно шире, чем при других позициях I2. Причиной этого служат отличия в рассматриваемых случаях конфигураций канала, которые реализуются в момент, когда он замыкает верхнюю и нижнюю границы поверхностного слоя. На этом этапе часть канала, выросшая в сторону ближайшей границы, не только короче, но и уже другой его части. И чем нановключение ближе к нижней границе, тем сильнее в указанный момент диспропорция между верхней и нижней частями канала. При ζ_f равном -20 и -24 нм (рис. 4а и 4б) эта диспропорция приводит к тому, что после заращивания сужения в районе нановключения формирование канала не прекращается (в отличие от случая на рис. 2б), и на следующем этапе наблюдается его значительное разрастание у нижней границы (наибольшее при -24 нм). В обоих случаях процесс образования канала завершается разрастанием его верхней части.

При дальнейшем сближении I2 с нижней границей ($\zeta_f = -28$ нм, рис. 4в) и, соответственно, большем укорачивании и утонении нижней части канала в момент соединения им границ, этапы заращивания сужения канала и его разрастания у

нижней границы оказываются совмещены. В результате канал получается уже, чем при $\zeta_f = -24$ нм. Кстати, та же последовательность основных этапов эволюции канала реализуется, когда нановключение I2 исходно имеет контакт с нижней границей (рис. 4г).

Следует подчеркнуть, что изменения размеров и формы канала, подобные описанным выше, наблюдаются при смещении нановключения I2 в сторону верхней границы.

Характерные особенности изменения проводящих каналов, отмеченные на рис. 4, воспроизводятся и при других сочетаниях значений δ_{cc} и размеров нановключений. При этом на эти особенности накладываются особенности, продемонстрированные на рис. 3, что в итоге приводит к образованию каналов очень разных размеров и форм. Разнообразие каналов, в свою очередь, отражается в большом разбросе значений сопротивления “элементарной” ячейки после ее перехода из ИС в НРС. Сопротивление ячейки в ИС равно 96.9 МОм. После перехода в НРС оно в рассмотренных при расчетах вариантах принимает значения в диапазоне от минимального 3.02 МОм

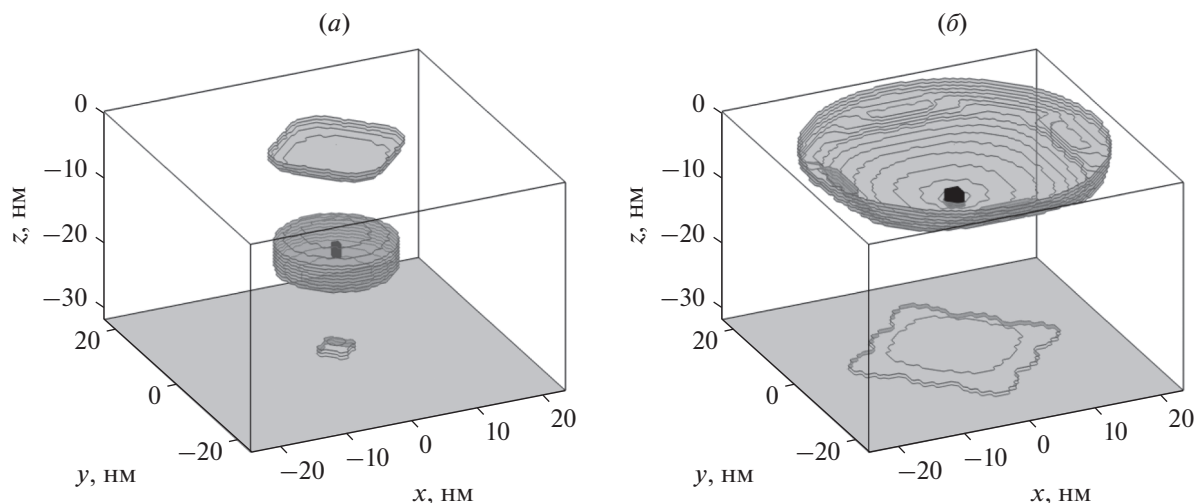


Рис. 5. Остатки проводящего канала после завершения переходов ИС-НРС-ВРС в случае: (а) I4 при $\delta_{cc} = 400$ и $\zeta_I = -16$ нм, (б) I2 при $\delta_{cc} = 400$ и $\zeta_I = -8$ нм.

(в случае варианта: I2, $\delta_{cc} = 400$ и $\zeta_I = -8$ нм) до максимального 79.2 МОм (в случае варианта: I4, $\delta_{cc} = 50$ и $\zeta_I = -16$ нм). Следует обратить внимание, что указанный диапазон заметно больше, чем в аналогичной ситуации у каналов, формирующихся у нановыступов на металлическом контакте (см. табл. 1 в [6]).

На рис. 2в и 2г показан вид “элементарной” ячейки с нановключением I2 после завершения переходов ИС-НРС-ВРС при $\delta_{cc} = 400$. Видно, что, как и в случае каналов от нановыступов, канал после перехода в ВРС полностью не разрушился. Кроме того, рис. 2г демонстрирует, что разрушение канала также происходит по сценарию, описанному ранее в [6]. Сначала на поверхности канала в зонах с кривизной, достаточно высокой для достижения в них критического значения напряженности электрического поля (на рисунке контуры канала до разрушения очерчены толстыми серыми кривыми), образуются каверны (пунктирные кривые). Поскольку в кавернах кривизна поверхности становится еще больше, они продолжают разрастаться, пока не происходит размыкание канала (черные сплошные кривые на рисунке). После размыкания разрушение канала продолжается до тех пор, пока его остаточные части не приобретут форму, исключающую наличие на их поверхности зон с критическим значением поля. Из рис. 2г и 5, следует, что нановключения могут находиться как вне остатков канала, так и внутри их. В последнем случае, если нановключение расположено далеко от границ поверхностного слоя, содержащий его остаток может не иметь контакта с этими границами (рис. 5а).

Важно отметить, что повышение напряжения $U_{ВРС}$ (в диапазоне от выбранных 0.4 В до максимальных 0.8 В) приводит во всех рассмотренных

конфигурациях к постепенному уменьшению остатков проводящего канала вплоть до их полного исчезновения.

Разнообразие форм каналов, получаемых при различных сочетаниях параметров, обуславливает изменение от варианта к варианту минимального значения напряжения $U_{ВРС}^{мин}$, при котором еще возможен запуск процесса разрушения проводящего канала. В рассмотренных вариантах $U_{ВРС}^{мин}$ меняется от 0.337 до 0.408 В, а его среднее значение равно ~ 0.3779 В. Однако, как и в [6], большая часть найденных значений $U_{ВРС}^{мин}$ (89.3%) лежит в диапазоне ± 0.025 В (или $\pm 6.61\%$) от среднего значения.

Приведенные в [5] экспериментальные данные получены в ходе многократных циклических переключений исследуемой структуры из одного резистивного состояния в другое. На рис. 6 показаны результаты расчетов для “элементарной” ячейки с нановключением I2 при $\delta_{cc} = 400$ и разными значениями ζ_I после завершения переходов ИС-НРС-ВРС-НРС и после последующего перехода в ВРС. Рисунок демонстрирует, что сохранение остатков проводящего канала в ВРС влияет на форму и размер проводящего канала, образуемого при очередном переключении в НРС (ср. рис. 2а и 6а). Кроме того, из рисунка следует, что при каждом новом переключении в ВРС могут формироваться совершенно разные остатки канала (ср. рис. 2в и 6б, а также рис. 5б и 6г). Таким образом, при циклических резистивных переключениях разнообразие форм и размеров каналов может существенно возрастать.

Завершая обсуждение результатов моделирования, необходимо подчеркнуть, что внимание в проведенном исследовании было уделено только

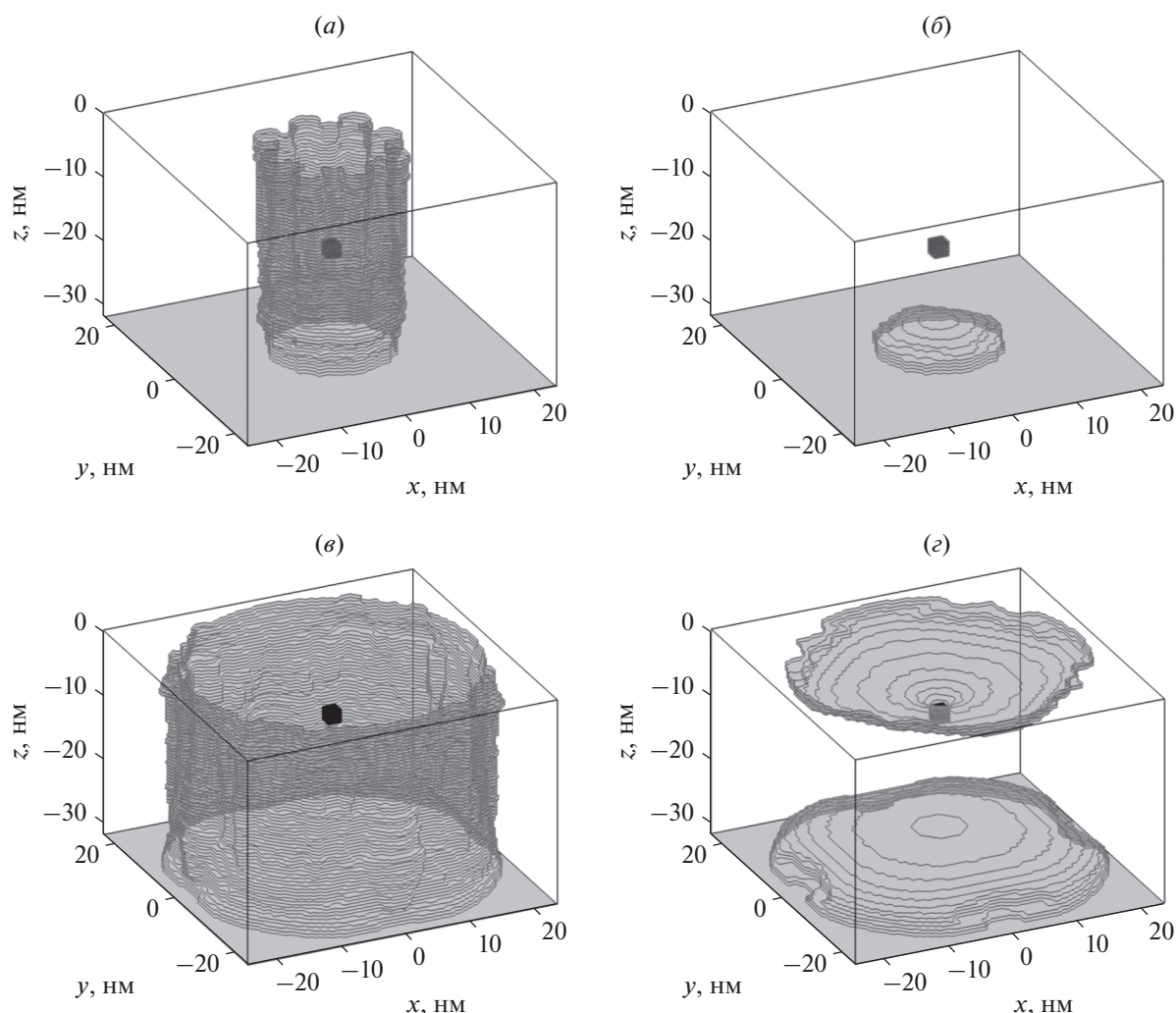


Рис. 6. Вид проводящего канала в “элементарной” ячейки с нановключением I2 при $\delta_{cc} = 400$: слева — после завершения переходов ИС-НРС-ВРС-НРС, справа — после последующего перехода в ВРС. Вверху — при $\zeta_I = -16$ нм, внизу — при $\zeta_I = -8$ нм.

объемным нановключениям, т.е. нановключениям, не находящимся в контакте либо с верхней, либо с нижней границей поверхностного слоя. Это связано с тем, что наличие такого контакта приводит в первом случае к ситуации, подобной той, что подробно рассмотрена в [6] (т.е. к моделированию проводящих каналов у нановыступов на контакте). Во втором случае ситуация отличается лишь тем, что канал от “нановыступа” на нижней границе растет вверх, а не вниз (ср. рис. 4г с рис. 3а в [6]).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С помощью модели “критического поля” проведено компьютерное исследование образования и разрушения проводящих каналов в поверхностном высокоомном слое в мемристивной структуре на основе микрокристалла (“чешуй-

ки”) селенида висмута. Источниками каналов полагались объемные неоднородности поверхностного слоя — нановключения, имеющие более высокую проводимость.

Результаты моделирования сравнивались с данными, полученными в предыдущем подобном исследовании, опубликованном в [6], в котором в качестве источников каналов рассматривались нановыступы на металлическом электроде, находящемся в контакте с поверхностным слоем.

Сравнение показало, что формирование каналов от нановключений и нановыступов протекает сходным образом. Однако, из-за того, что нановключения могут занимать различные позиции внутри поверхностного слоя, порожденные ими каналы отличаются большим разнообразием размеров, форм и свойств.

Разрушение проводящих каналов в сравниваемых случаях также происходит одинаково – процесс в основном управляется зарождением и развитием каверн на поверхности каналов в зонах повышенной напряженности электрического поля. Как продемонстрировало моделирование в случае каналов от нановыступов, именно специфическим поведением этих каверн можно объяснить экспериментально обнаруженные свойства рассматриваемой структуры (см. [5]): наличие нескольких высокорезистивных состояний и особенности переходов в эти состояния, важные для нейроморфных приложений.

Таким образом, полученные в данной работе результаты позволяют дополнить теоретические представления о функционировании мемристивной структуры на основе микрокристалла селенида висмута, что является важным как для ее оптимизации, так и практического применения.

БЛАГОДАРНОСТИ

Автор выражает признательность Н.А. Тулиной за плодотворное обсуждение материала данной статьи.

Работа выполнена в рамках госзадания ИПТМ РАН № 075-01304-23-00.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Tulina N.A., Borisenko I.Yu., Shmytko I.M., Ionov A.M., Kolesnikov N.N., Borisenko D.N.* Induced non-metallicity during resistive switching in structures based on a topological insulator Bi_2Se_3 // *Phys. Lett. A*. 2012. V. 376. № 45. P. 3398–3401.
2. *Tulina N.A., Rossolenko A.N., Shmytko I.M., Kolesnikov N.N., Borisenko P.N., Bozhko S.I., Ionov A.M.* Rectification and resistive switching in mesoscopic heterostructures based on Bi_2Se_3 // *Materials Letters*. 2015. V. 158. P. 403–405.
3. *Тулина Н.А., Россоленко А.Н., Шмытько И.М., Колесников Н.Н., Борисенко Д.Н., Сироткин В.В., Борисенко И.Ю.* Частотные свойства гетероструктур на основе селенида висмута в эффектах резистивных переключений. эксперимент, численное моделирование // *Известия РАН, сер. Физическая*. 2016. Т. 80. № 6. С. 741–743.
4. *Тулина Н.А., Россоленко А.Н., Шмытько И.М., Колесников Н.Н., Борисенко Д.Н., Сироткин В.В., Борисенко И.Ю., Тулин В.А.* Исследование динамических эффектов в мемристивных структурах на основе селенида висмута. Нужен ли мемристору “хвост шаттла” // *Известия РАН, сер. Физическая*. 2019. Т. 83. № 6. С. 813–817.
5. *Zotov A.V., Sirotkin V.V., Il'in A.I., Trofimov O.V., Borisenko P.N., Kolesnikov N.N., Tulin V.A.* Multilevel memristive structures based on bismuth selenide microcrystals // *Chaos, Solitons and Fractals*. 2021. V. 143. P. 110542.
6. *Сироткин В.В., Зотов А.В., Тулин В.А.* Компьютерный анализ резистивных переключений в структуре на основе микрокристалла селенида висмута // *Микроэлектроника*. 2022. Т. 51. № 6. С. 457–465.
7. *Сироткин В.В.* Компьютерное исследование влияния неоднородностей металлического контакта на резистивные переключения в гетероструктуре на основе селенида висмута // *Микроэлектроника*. 2021. Т. 50. № 5. С. 363–369.
8. *Tumelero M.A., Faccio R., Pasa A.A.* The role of interstitial native defects in the topological insulator Bi_2Se_3 // *J. Phys. Condens. Matter*. 2016. V. 28. № 42. P. 425801.
9. *Callaert C., Bercx M., Lamoen D., Hadermann J.* Interstitial defects in the van der Waals gap of Bi_2Se_3 // *Acta Crystallogr. Sect. B Struct. Sci. Cryst. Eng. Mater.* 2019. V. 75. № 4. P. 717–732.
10. *Тулина Н.А., Сироткин В.В., Борисенко И.Ю., Иванов А.А.* Моделирование резистивных переключений в гетероструктурах на основе оксидных соединений // *Известия РАН, сер. Физическая*. 2013. Т. 77. № 3. С. 297–299.
11. *Tulina N.A., Borisenko I.Yu., Sirotkin V.V.* Bipolar resistive switchings in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ // *Solid State Communications*. 2013. V. 170. № 1. P. 48–52.