

МОДЕЛЬ МЕХАНИЗМА МНОГОФИЛАМЕНТНОГО
РЕЗИСТИВНОГО ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ МЕМРИСТОРА
С ПРЫЖКОВЫМ ТИПОМ ПРОВОДИМОСТИ

© 2023 г. В. А. Дёмин^{1,*}, А. И. Ильясов^{1,2,**}, В. В. Рыльков¹,
П. К. Кашкаров^{1,2,3}, М. В. Ковальчук^{1,2,3}

¹Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, Россия

²Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

³Московский физико-технический институт, Москва, Россия

*E-mail: demin.vyacheslav@mail.ru

**E-mail: sashailyasov99@gmail.com

Поступила в редакцию 20.02.2023 г.

После доработки 20.02.2023 г.

Принята к публикации 27.02.2023 г.

Для многих разрабатываемых приложений, включая обучаемые нейроморфные вычислительные системы, важен аналоговый или, по крайней мере, многоуровневый характер резистивного переключения (РП) мемристоровых устройств. В структурах типа металл–диэлектрик–металл (МДМ) его часто связывают с образованием множества проводящих каналов, или филаментов, но в большинстве случаев, особенно в случае вакансионного механизма РП, прямое экспериментальное наблюдение множества филаментов затруднено или невозможно. С использованием физических принципов выведена модель явного распределения филаментов по значениям проводимости для нанокompозитного мемристора на основе LiNbO_3 , которая, тем не менее, может быть справедлива для других типов МДМ–мемристоров с прыжковой проводимостью по оборванным связям в аморфном диэлектрическом слое. В дополнение к косвенным свидетельствам на основе магнитных и емкостных измерений данная модель подтверждает механизм многофиламентного РП за счет аппроксимации экспериментальных данных по синаптической пластичности, т.е. изменению проводимости мемристора на парах импульсов, прикладываемых к структуре. Результаты настоящего исследования открывают перспективы микроскопического изучения резистивного переключения в МДМ–структурах с применением модельных распределений филаментов и обосновывают возможность успешного применения рассматриваемых нанокompозитных мемристоров в качестве синаптических элементов нейроморфных сетей.

DOI: 10.56304/S199272232302005X

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время наблюдается повышенный интерес к изучению мемристивных структур типа металл–диэлектрик–металл (МДМ), демонстрирующих обратимые эффекты резистивного переключения (РП), в связи с перспективами их использования для создания элементов многоуровневой памяти и массивов синаптических мемристоров в кроссбар-исполнении, необходимых для построения нейроморфных вычислительных систем (НВС), нацеленных на решение задач искусственного интеллекта путем аппаратной эмуляции принципов работы биологических нейронных сетей [1–8].

Эффекты РП, обычно наблюдаемые в структурах МДМ, обусловлены процессами электромиграции вакансий кислорода (анионов) или катио-

нов металлов [9, 10]. В результате в оксидном изолирующем слое образуются (или разрушаются) нитевидные проводящие каналы (филаменты), а структура переключается соответственно в низкоомное (Low-Resistance State, **LRS**) или высокоомное (High-Resistance State, **HRS**) состояние. Характер формирования филаментов в значительной степени случаен, что является одной из основных причин деградации свойств мемристоров при циклических РП [9, 10]. Другой недостаток анионных или катионных мемристивных МДМ–структур связан с тем, что для их устойчивой работы необходима, как правило, формовка, заключающаяся в подаче на структуру относительно высокого напряжения, при котором образуются филаменты (мостики). Возможны, однако, и другие механизмы РП, не требующие формовки. Например, связанные с перезарядкой

локализованных электронных состояний в области барьера Шоттки и/или в объеме оксида ([11, 12] и ссылки там), электрической переполаризацией сегнетоэлектрического оксида [13, 14], окислительно-восстановительными реакциями в органических материалах [15], эффектом электронного увлечения [16] и, наконец, с температурно инициированным переходом металл–изолятор в моттовских материалах (NbO_2 , VO_2 , V_2O_3), который сравнительно давно был обнаружен, но до сих пор является предметом дискуссий и исследований [17]. Тем не менее наибольший интерес проявляется к оксидным мемристивным структурам как к системам, которые могут обладать многоуровневым характером РП при больших временах хранения резистивных состояний, а также довольно технологичны в изготовлении и могут быть легко интегрированы в современную микроэлектронную технологию [1, 9].

Несмотря на значительный накопленный экспериментальный материал, микроскопическая теория обратимых эффектов РП до сих пор отсутствует. Последнее, в частности, обусловлено как трудностями описания взаимосвязанных неравновесных процессов теплового, электронного и ионного транспорта на нанометровых масштабах, так и с дополнительными эффектами: с участием нескольких каналов РП, связанных, например, одновременным проявлением катионного и анионного переносов [18], синергетическими вкладами в РП электрической поляризации сегнетоэлектрика и ионного транспорта [14], с явлениями типа квантования проводимости структуры [19, 20] и др.

Во многих мемристивных структурах типа МДМ продемонстрирован филаментный тип РП, частным вариантом которого является образование единичных металлических мостиков между электродами, наблюдавшихся экспериментально [21]. Вообще говоря, прямое наблюдение филаментного типа РП представляет собой большую проблему, так как фактически единственным вариантом такого наблюдения являются электронно-микроскопические исследования, но они затруднены в случае низкого электронного контраста исследуемых структур. Важным подтипом является многофиламентный механизм резистивного переключения МДМ-мемристоров, когда переход между различными резистивными состояниями обусловлен образованием не единичных, а множества (>10) проводящих каналов. Большое число филаментов обуславливает возможность градуального изменения проводимости и, соответственно, многоуровневый или близкий к аналоговому характер РП, так необходимый в нейроморфным приложениям. Но даже сам факт подтверждения и исследования многофиламентного типа РП сопряжен с большими экспериментальными трудностями. Для некоторых типов МДМ-

структур, в том числе для нанокompозитных с диэлектрической прослойкой у нижнего электрода (М/НК/М) образцов, изучаемых в настоящей работе, были получены косвенные экспериментальные свидетельства образования именно большого числа, а не единичных филаментов в процессе РП [22, 23].

В настоящей работе наряду с кратким обзором ранее полученных косвенных данных в пользу многофиламентного резистивного переключения в М/НК/М мемристивных элементах на основе LiNbO_3 с металлическими гранулами предлагается оригинальная физическая модель РП, учитывающая распределение филаментов по значениям проводимости. Такая модель позволяет интерпретировать данные импульсных измерений по вариации проводимости НК-мемристора и объяснить ряд особенностей на соответствующих зависимостях в случае перехода из HRS в LRS и обратно. Более того, проводится сравнение с использованием однофиламентной модели, построенной на тех же физических принципах, на основе чего делается вывод о характере РП в исследуемых структурах. В заключение приведены соображения об универсальности предложенной модели и возможности ее применения к изучению микроскопического механизма РП для других мемристивных элементов филаментного типа, а также затронуты некоторые открытые вопросы и перспективы, связанные с развитием нового подхода.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Экспериментальные свидетельства в пользу многофиламентного механизма РП

В случае структур металл/нанокompозит/металл (М/НК/М) на основе металл-оксидных НК переход в проводящее состояние должен определяться перколяционными цепочками, заданными пространственным положением и концентрацией наногранул металла в НК, поэтому стабильность РП должна быть высокой [24]. Впервые важность эффектов перколяции в РП структур М/НК/М была продемонстрирована в [24–26]. Отметим, что ранее ошутимых результатов удалось достичь в структурах М/Pt– SiO_2 /М, в которых активный слой создавался магнетронным распылением составной Pt/ SiO_2 -мишени и состоял из матрицы SiO_2 с диспергированными атомарными нанокластерами Pt [27]. Показано, что в этом случае максимальное число РП N_{max} превышает 3×10^7 при времени хранения резистивных состояний (retention time) $t_r > 6$ мес. Механизм, ответственный за РП, в [27] не был установлен. Предположительно он связан с движением вакансий кислорода и образованием проводящих каналов-филаментов, формируемых при РП, а также с локальным разогревом и укрупнением в

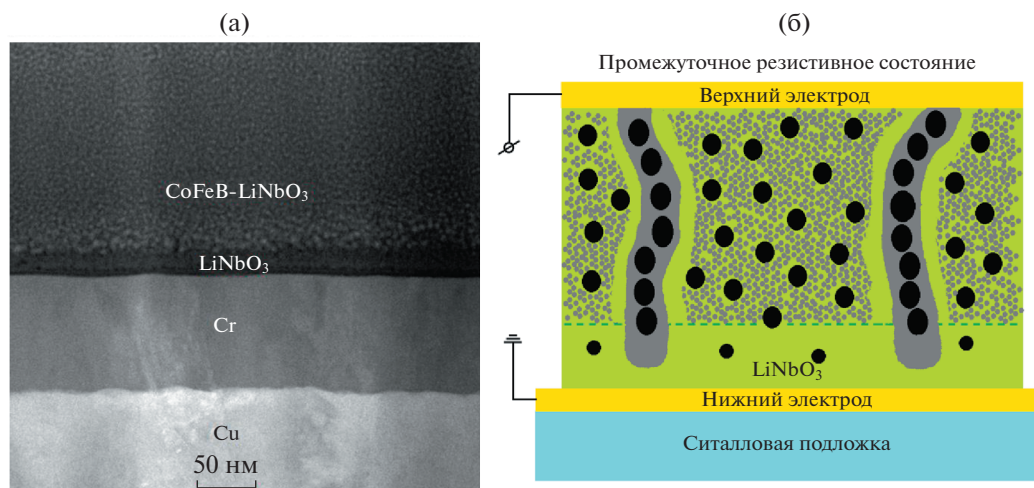


Рис. 1. Темнопольное высокоугловое ПРЭМ-изображение границы нанокompозита CoFeB–LiNbO₃ с нижним электродом Cr/Cu, разделенных тонкой прослойкой LiNbO₃ толщиной ~15 нм (а). Структура М/НК/М в промежуточном резистивном состоянии (б). Зеленым цветом показана аморфная матрица LiNbO₃, содержащая металлические наногранулы CoFeB (черные овалы) и неравновесную фазу атомов Co и Fe с концентрацией $n_i \sim (10^{21}–10^{22}) \text{ см}^{-3}$ (серые круги). Зеленая пунктирная линия отделяет высокоомный слой вблизи нижнего электрода структуры от преимущественно стехиометрического LiNbO₃, в котором отсутствует неравновесная атомно-металлическая фаза. Серые области, окружающие цепочки гранул, представляют собой металлический конденсат, который возникает из-за процессов нуклеации атомов Co и Fe и вакансий кислорода при протекании тока через структуру.

них наночастиц Pt (от 2–3 до 3–4 нм). В [28] были изучены структуры М/W–SiO₂/n-Si с нижним контактом из сильно легированного n-Si ($\rho < 0.05 \text{ Ом см}$), в которых активный слой создавался путем имплантации SiO₂ ионами W. Показано, что такие структуры не требуют формовки. При этом даже при наличии металлических наночастиц W в активном переключающем слое W–SiO₂ достигается достаточно большое отношение сопротивлений в HRS (*off*) и LRS (*on*) состояниях $R_{\text{off}}/R_{\text{on}} > 10^4$ при $N_{\text{max}} \approx 4 \times 10^2$ и $t_r \approx 10^4 \text{ с}$ [28]. Отметим, что пластичность разработанных в [27, 28] мемристорных структур не исследовалась; не была изучена и возможная связь РП структур с эффектами их перколяционной проводимости.

В исследованиях М/НК/М-структур на основе НК (CoFeB)_x(LiNbO₃)_{100-x} [24, 25] был обнаружен мемристивный эффект с отношением $R_{\text{off}}/R_{\text{on}}$, достигающим ~100 при некотором оптимальном значении $x = x_{\text{opt}} \approx 8–15 \text{ ат. \%}$ ниже порога перколяции НК. Эффект хорошо воспроизводится при числе циклов РП $> 10^5$ и практически не зависит от типа контактов [24, 25, 29]. При этом эффект формовки практически не проявляется, т.е. напряжения U_{RS} переключения из HRS в LRS при первом и последующих переключениях близки в отличие от МОМ-структур на основе однородных оксидов [2, 3, 9]. Наконец, синтезированные М/НК/М-структуры обладали высокой степенью пластичности (плавным характером изменения резистивного состояния в окне $R_{\text{off}}–R_{\text{on}}$), что поз-

волило эмулировать важные свойства биологических синапсов [4, 6, 8].

Многоуровневый характер РП в сочетании с длительным временем хранения резистивных состояний достигается в структурах с развитой оксидной прослойкой у нижнего электрода, формируемой на начальном росте НК при довольно высоком парциальном давлении кислорода $P_{\text{O}_2} \approx 2.5 \times 10^{-5} \text{ Торр}$ в режиме заданного его потока (рис. 1). В этом случае оптимальное содержание металла для наблюдения РП смещается в область больших значений $x = x_{\text{opt}} \approx 15 \text{ ат. \%}$ [30].

Впоследствии, однако, выяснилось, что существование оксидной прослойки не гарантирует наблюдения устойчивых РП в М/НК/М-структурах. Другим важным параметром НК для наблюдения РП является наличие в нем диспергированных магнитных атомов в изолирующей матрице в достаточно больших количествах ($N_d \sim 10^{22} \text{ см}^{-3}$); при малом $N_d \sim 10^{21} \text{ см}^{-3}$ РП становятся неустойчивыми и практически перестают наблюдаться [31]. Данный факт, большие предельные токи при РП (до 100 мА; вставка на рис. 2а), а также недавнее обнаружение эффекта сильного увеличения емкости (в 8 раз) при переключении М/НК/М-структуры из HRS в LRS (рис. 2а) привели нас к качественной многофиламентной модели РП [30], которая поясняется на рис. 1б.

В первоначальном состоянии сразу после изготовления М/НК/М-структуры диспергированные атомы равномерно распределены в изолиру-

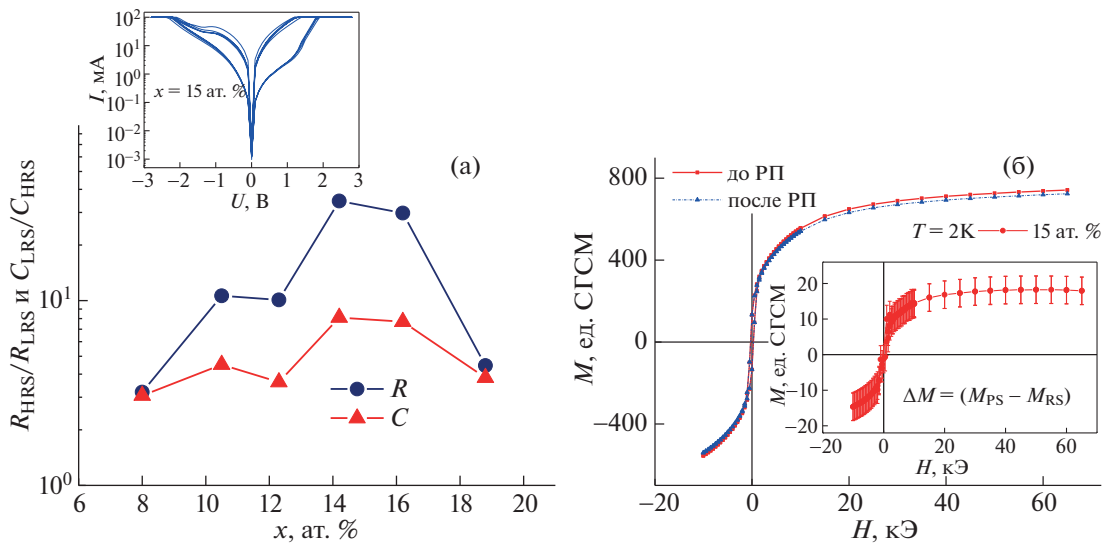


Рис. 2. Зависимость относительного изменения сопротивления и емкости структуры М/НК/М при ее переключении между HRS и LRS от содержания металлической фазы на частоте 1 кГц. На вставке показаны 6 циклов ВАХ (а). Зависимость намагниченности от напряженности магнитного поля $M(H)$ для структур М/НК/М с $x \approx 15$ ат. %, измеренная при $T = 2$ К до и после цикла РП (б). На вставке показана зависимость уменьшения намагниченности $\Delta M(H) = (M_{\text{PS}} - M_{\text{RS}})$ после РП, где M_{PS} и M_{RS} – намагниченности насыщения в начальном состоянии (pristine state) и после РП соответственно.

ющей матрице НК. Однако при подаче напряжения и прохождении тока может происходить нуклеация диспергированных атомов вокруг цепочек гранул, образующих перколяционные пути (рис. 1б), и, как следствие, образование проводящих “металлизированных” цепочек (МЦ). Очевидно, что проявление эффектов нуклеации обусловлено в данном случае сильной перенасыщенностью рассматриваемой системы атомарной фазой металлов и наличием в ней металлических зародышей (наночастиц). Подобные эффекты наблюдались, например, в мемристивных структурах на основе SiO_2 с диспергированными атомами Pt или W [27, 28].

При подаче на верхний электрод достаточно большого положительного напряжения структура стремится перейти в LRS за счет перемещения кислородных вакансий и катионов к нижнему электроду вдоль МЦ и уменьшения эффективного зазора l_{eff} между МЦ и нижним электродом в аморфной диэлектрической прослойке (рис. 1б). С другой стороны, емкость структуры в этой ситуации должна увеличиваться, так как в первом приближении величина емкости $C \propto 1/l_{\text{eff}}$. Данный факт ярко проявляется при изучении корреляции в поведении отношения сопротивлений $R_{\text{off}}/R_{\text{on}}$ с изменением отношения емкости структур М/НК/М в состояниях HRS (C_{off}) и LRS (C_{on}), выполненных на образцах с различным содержанием металлической фазы x (рис. 2а). Видно, что поведение носит антикоррелированный характер (с ростом $R_{\text{off}}/R_{\text{on}}$ увеличивается отношение $C_{\text{on}}/C_{\text{off}}$)

в соответствии с предложенной в [30] моделью. Отметим, что в случае наличия единичного или малого числа филаментов с небольшой суммарной площадью сечения по сравнению с площадью электрода существенного изменения суммарной емкости не наблюдалось бы ввиду малости емкости зазоров между филаментами и нижним электродом по сравнению с общей емкостью структуры.

Дополнительным подтверждением многофиламентной модели является наблюдение уменьшения намагниченности М/НК/М-структуры при ее РП (рис. 2б), которое можно интерпретировать следующим образом. Диспергированная атомарная металлическая фаза представляет собой в основном ионы Fe^{2+} и Co^{2+} с магнитным моментом на ион $m_i = 5.4$ и $4.8 \mu_B$ соответственно, где μ_B – магнетон Бора ([30] и ссылки там). Между тем магнитный момент атомов Co и Fe существенно ниже: $m_m = 1.72, 2.22$ и $2.33 \mu_B$ для атомов металлов Co и Fe и сплава CoFe соответственно. Следовательно, можно ожидать падения намагниченности М/НК/М-структуры после ее РП, если предположить, как описано выше, частичную нуклеацию магнитных ионов Fe^{2+} и Co^{2+} в металлические гранулы в процессе первого РП, представляющего собой в этом случае вариант мягкой формовки (без существенного изменения напряжения переключения U_{RS}). Падение намагниченности действительно обнаружено в образцах, в которых вклад парамагнитной компоненты в намагниченности превышал вклад ферромагнитной компоненты или был сравним с ним (рис. 2б).

Многофиламентный характер РП следует также из анализа данных измерений предельных токов в исследуемых образцах. В [30] были измерены токи пробоя для М/НК/М-структур с разным содержанием металлической фазы x . Представленные данные ясно указывают на существование двух механизмов пробоя, один из которых реализуется при содержании металлической фазы менее 13.5 ат. %. Предельный ток необратимого РП в этом случае составляет $I_{\text{break}} \approx 20\text{--}30$ мкА. Однако при высоких значениях $x \approx 13.5$ ат. % и более наблюдается резкое (почти на 4 порядка) увеличение I_{break} до ~ 100 мА. Обнаруженный эффект сильного увеличения предельного тока при РП с увеличением x естественным образом связываем с проявлением многофиламентного механизма РП. Если предположить, что такой ток протекает через единичные МЦ, поперечный размер которых незначительно превышает диаметр гранул и составляет ~ 10 нм, как для филаментов большинства мемристоров [9, 10, 32], то плотность тока достигала бы около 10^{11} А/см². Это физически не реализуемая величина в сравнении с предельным током ($\sim 10^7$ А/см²), который могут выдерживать металлические проводники, не разрушаясь за счет электромиграционных эффектов ([16] и ссылки там). Отсюда следует, что при РП структуры М/НК/М в LRS ее проводимость определяется многими МЦ ($>10^4$).

Многофиламентный характер РП не только обеспечивает устойчивые РП структур М/НК/М, но и плавный характер изменения их сопротивления в окне $R_{\text{off}}\text{--}R_{\text{on}}$, что в свою очередь определяет возможности их использования в нейроморфной электронике [1–7]. Несмотря на представленные экспериментальные данные, свидетельствующие в пользу образования большого числа филаментов в структуре М/НК/М при РП, они не раскрывают микроскопического характера перехода между резистивными состояниями, особенно из состояния HRS в LRS, при котором можно ожидать достаточно резкой смены типа проводимости за счет формирования филаментов, примыкающих к нижнему электроду (см. ниже). В этом случае установить, хотя бы качественно, моно- или многофиламентный характер РП может помочь моделирование соответствующих процессов.

Модель однофиламентного РП в НК-мемристоре

Согласно представленной в предыдущем разделе качественной картине, РП мемристивных структур на основе НК объясняется образованием высокоомного аморфного межграницного слоя LiNbO_3 (толщиной $l_{\text{max}} \approx 15\text{--}20$ нм), содержащего множественные зазоры между краями низкоомных филаментов и нижним электродом структуры М/НК/М. Эта диэлектрическая про-

слойка определяет вариацию емкости и сопротивления всей структуры за счет изменения ее эффективной толщины $l_{\text{eff}} \leq \sim 20$ нм (при вариации длин отдельных филаментов) за счет приложения соответствующего электрического поля. Существенно, что проводимость структуры в промежуточном резистивном состоянии имеет прыжковый характер, определяемый большой плотностью локализованных состояний вблизи уровня Ферми, обусловленных оборванными связями в аморфном диэлектрическом слое и кислородными вакансиями. Очевидно, что в этих условиях могут возникать эффекты неупругого резонансного туннелирования, которые описываются экспоненциальной зависимостью удельного сопротивления зазора от его толщины l [33]:

$$r_g(l, T) = \rho_d(T) \exp \frac{2l}{a(n+1)}, \quad (1)$$

где a – радиус локализованного состояния, а n – количество доступных энергетических состояний в резонансной цепи локализованных дефектов.

В пределе низких температур T и числа резонансных состояний $n = 2$ температурная зависимость удельного сопротивления диэлектрической прослойки $\rho_d(T)$ имеет степенной характер, $\rho_d(T) \propto T^{-4/3}$ [33]. С повышением температуры увеличивается и значение n . При $n > 6$ зависимость $\rho_d(T)$ постепенно преобразуется в активационную зависимость проводимости по изолированным цепочкам примесей [34, 35], которая, в свою очередь, переходит в объемную проводимость с переменной длиной прыжка, $\ln \rho_d(T) \propto \alpha (T_0/T)^\alpha$, с $\alpha = 1/4$ для закона Мотта и $\alpha = 1/2$ при наличии кулоновской щели в плотности состояний вблизи уровня Ферми (закон Эфроса–Шкловского) [33, 36, 37].

Рассматривая модельный филамент в форме цилиндра с площадью поперечного сечения S и используя простой подход для описания изменения сопротивления единичного филамента при изменении толщины зазора l между границей филамента и нижним электродом структуры [38], а также принимая во внимание комментарии, сделанные выше, получаем формулы для проводимости g филамента и ее малого изменения в следующем виде [6]:

$$g(l, T) = \frac{S}{\rho_f(d-l) + \rho_d l \exp \frac{2l}{a_{\text{eff}}}} \approx \frac{g_{\text{on}} c}{c + x e^x}, \quad (2)$$

$$|\Delta g(T, x)| \approx \frac{g_{\text{on}} c e^x (x+1)}{(c + x e^x)^2} \Delta x, \quad (3)$$

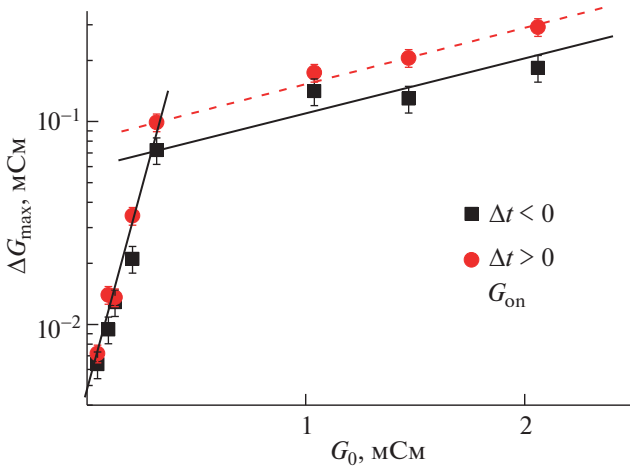


Рис. 3. Зависимость амплитуды максимума изменения проводимости НК-мемристора от его начального значения проводимости. Кривые получены с использованием перекрывающихся парных импульсов по типу регистрации STDP-пластичности. Точки представляют собой экспериментальные значения, прямые линии – ориентиры для глаз. Задержка между импульсами $\Delta t > 0$ соответствует потенциации (увеличению) проводимости, в то время как отрицательная задержка $\Delta t < 0$ – депрессированию (уменьшению) проводимости мемристора.

где $a_{\text{eff}} = a(n + 1)$, $x = 2l/a_{\text{eff}}$, $c = 2\rho_f d / (\rho_d a_{\text{eff}})$, $g_{\text{on}} = S / (\rho_f d)$, знак приближенного равенства учитывает тот факт, что $l \ll d$. Здесь $d \sim 1$ мкм – толщина слоя НК, которая приблизительно соответствует общей толщине структуры и суммарной длине филамента (рис. 1а, а также [30]). Формула (3) получена дифференцированием (2), поэтому здесь и ниже будем рассматривать приближение только малых приращений.

Изменение длины филамента может произойти под действием одного приложенного импульса напряжения или пары перекрывающихся во времени и, соответственно, накладывающихся друг на друга импульсов, если один из них приложен к верхнему, а второй – к нижнему электроду структуры. Такая ситуация имеет место, например, в случае использования динамической пластичности мемристора типа STDP для его настройки в составе импульсной нейронной сети [4, 6]. Но здесь рассмотрим экспериментальную зависимость такого типа (рис. 3) с целью его дальнейшего приближения модельными зависимостями.

Заметим, что воздействие пары наложенных друг на друга пре- и постсинаптических импульсов на мемристор (при задержке между ними в несколько мс) практически эквивалентно подаче на него униполярного импульса [4], в случае данных на рис. 3 с $V_{\text{sp}} \approx 5$ В и длительностью $\Delta t \approx 1$ мс во время потенциации или $V_{\text{sp}} \approx -5$ В во время депрессирования. Отметим также, что данные,

представленные на рис. 3, получены для различных начальных значений проводимости (на момент начала подачи пары импульсов), но во всех случаях вблизи края HRS, так как высокопроводящее состояние данного НК-мемристора характеризуется значением $G_{\text{on}} = 10$ мСм $\gg G_0$.

Изменение ширины зазора между филаментом и нижним электродом может быть оценено с учетом дрейфа в электрическом поле кислородных вакансий [6]: $\Delta l \approx -\mu (V_g/l) \Delta t$, где μ – подвижность кислородных вакансий, а $V_g = V_{\text{sp}} / (1 + c/x e^x)$ – напряжение, падающее на зазоре.

Можно предположить, что высокое сопротивление НК-структуры с одним филаментом соответствует ширине зазора не менее $l_{\text{max}} \sim 20$ нм (типичная толщина оксидной прослойки у нижнего электрода НК-структуры). При этом и других необходимых условиях ($a \approx 1$ нм, $n = 4$ и $g_{\text{on}}/g_{\text{off}} \sim \sim 2000$ (см. ниже)) это дает максимальное значение $x_{\text{max}} \equiv L = 2l_{\text{max}}/a_{\text{eff}} \approx 8$, с использованием уравнения (2) значение $c \approx \frac{g_{\text{off}}}{g_{\text{on}}} L e^L \approx 12$, так что $x = 1$ (соответствующее $l \approx 2.5$ нм) и меньшие значения разумно приближают состояние LRS ($g \geq 0.8 g_{\text{on}}$) однофиламентной НК-структуры. Это рассуждение позволяет рассматривать $x \geq 1$ в следующей оценке:

$$\begin{aligned} |\Delta g(x, T)| &\approx \frac{g_{\text{on}} c e^x (x + 1) 4\mu \Delta t}{(c + x e^x)^2} \frac{V_{\text{sp}}}{a_{\text{eff}}^2 x \left(1 + \frac{c}{x e^x}\right)} = \\ &= \frac{g_{\text{on}} c (x e^x)^2}{(c + x e^x)^3} \cdot \frac{1}{x} \left(1 + \frac{1}{x}\right) \frac{4\mu V_{\text{sp}} \Delta t}{a_{\text{eff}}^2} \approx \\ &\approx \Gamma \frac{g}{g_{\text{on}}} \left(1 - \frac{g}{g_{\text{on}}}\right)^2, \end{aligned} \quad (4)$$

где $\Gamma = 4g_{\text{on}} \mu V_{\text{sp}} \Delta t / a_{\text{eff}}^2 \cdot (1/x_{\text{eff}})(1 + 1/x_{\text{eff}})$ – константа, а $x_{\text{eff}} \approx 5$ – характерное значение x в пределах диапазона его изменения (примерно от 1 до 8). Последний переход в (4) применим вследствие того, что в зависимости $\Delta g(x)$ преобладают экспоненциальные факторы, (4) стремится к 0 при $x \rightarrow 0$ и, в целом, все выражение численно не сильно меняется при учете непостоянства фактора $\frac{1}{x} \left(1 + \frac{1}{x}\right)$.

Важно отметить в однофиламентной модели сильную зависимость подвижности кислородных вакансий от эффективной температуры филамента. Для описания дрейфа или диффузии ионов/вакансий обычно используется простая одномерная жесткая точечная ионная модель Мотта и Гурни ([39, 40] и ссылки в них):

$$\begin{aligned} \mu(T) &\approx \frac{eD_0}{kT} \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \cong \\ &\cong \frac{eD_0}{kT} \exp\left(-\frac{E_a/k}{T_0 + V_{sp}^2 g \Delta t / (m_f C_f)}\right) = \\ &= \frac{eD_0}{kT} \exp\left(-\frac{\theta}{1 + (g/g_{on})\tau}\right), \end{aligned} \quad (5)$$

где e – элементарный заряд, $D_0 \sim 2 \times 10^{-3} \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$ – предэкспоненциальный фактор коэффициента диффузии, k – постоянная Больцмана, $E_a \sim 0.5$ – 1 эВ энергия активации миграции кислородной вакансии в аморфном LiNbO_3 , T – локальная температура. Предположим здесь, для грубой оценки, джоулев разогрев филамента с массой m_f и эффективной теплоемкостью C_f от комнатной температуры T_0 до некоторой T без рассеяния тепла во время приложения к структуре импульса с амплитудой V_{sp} . Предэкспоненциальный множитель с обратной температурой будем считать постоянной величиной по сравнению с экспоненциальной зависимостью от T . Безразмерная энергия активации $\theta = E_a / (kT_0)$ имеет значение от 20 до 40 для $E_a \sim 0.5$ – 1 эВ, а безразмерная температура, до которой может быть нагрет высокопроводящий филамент, $\tau = V_{sp}^2 g_{on} \Delta t / (m_f C_f T_0) = \Delta T_{max} / T_0$, по порядку величины ~ 1 в случае локального разогрева до $\sim 300^\circ\text{C}$ в соответствии с типичными оценками [39, 40].

Отметим, что в $\rho_d(T)$ присутствует другая, степенная или более слабая экспоненциальная, зависимость от температуры, как упоминалось выше. Однако ее учет лишь незначительно меняет положение максимума на кривой $\Delta\gamma(\gamma)$ (см. ниже) и принципиально не влияет на выводы настоящего анализа, поэтому не будем учитывать этот вклад в качественном рассмотрении.

Наконец, объединяя (4) и (5), получаем проводимость (для удобства в безразмерной форме) однофиламентной НК-структуры:

$$|\Delta\gamma(\gamma)| \approx \Gamma_0 \gamma (1 - \gamma)^2 \exp\left(-\frac{\theta}{1 + \gamma\tau}\right), \quad (6)$$

где $\gamma \equiv g/g_{on}$, $\Gamma_0 = 4 \frac{eD_0 V_{sp} \Delta t}{kT_0 a_{eff}^2} \cdot (1/x_{eff})(1 + 1/x_{eff})$.

Можно видеть, что (6) имеет линейную зависимость от γ в самом начале кривой, т.е. при проводимости, близкой к HRS. Далее кривая (6) имеет максимум примерно при $\gamma \approx 0.7$ – 0.9 , при разумных значениях параметров, входящих в формулу (рис. 4). Кроме того, $\Delta\gamma(\gamma)$ стремится к 0, когда γ приближается к 0 или 1, определяя “мягкие границы” (soft bounds) окна сопротивлений в однофиламентной модели НК-мемристора.

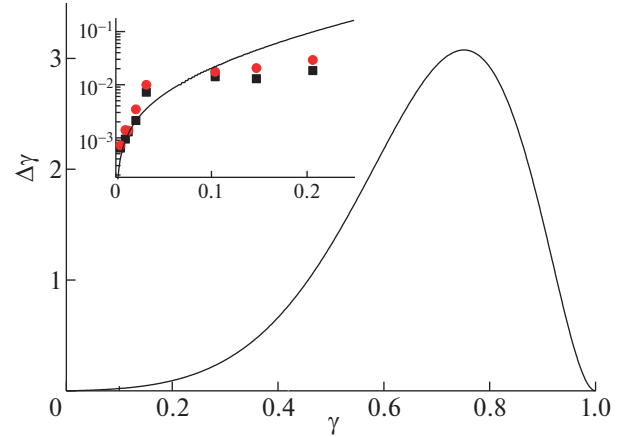


Рис. 4. Зависимость (5) $\Delta\gamma(\gamma)$ для однофиламентной модели РП в НК-мемристоре. На вставке в логарифмическом масштабе показан начальный участок зависимости (сплошная кривая) вместе с экспериментальными значениями рис. 3 (точки), перестроенными в координатах относительной проводимости с учетом того, что максимальная проводимость НК-структуры $G_{max} = 10 \text{ мСм}$.

Анализ вставки к рис. 4 показывает, что однофиламентная модель не может удовлетворительно объяснить экспериментальные изменения проводимости под действием импульсов напряжения, приложенных к структуре: начальный участок модельной кривой при любых значениях подгоночных параметров меняется слишком резко по сравнению с экспериментальными зависимостями. Более того, при параметрах аппроксимации, наиболее близко приближающих экспериментальные данные вблизи HRS (вставка на рис. 4), $\Delta\gamma(\gamma)$ имеет нереалистично большие значения вариации проводимости в большинстве точек диапазона начальной проводимости γ (рис. 4, особенно в максимуме кривой), при котором принятое в рассмотрении приближение малых приращений перестает работать.

Многофиламентная модель РП в НК-мемристоре

Рассмотрим модель РП в НК-мемристоре с некоторым распределением филаментов по длине либо, что то же самое, по величине зазора между границей высокопроводящей части филамента и нижним электродом мемристорной структуры. Величина зазора однозначно определяет общую проводимость нитевидных каналов, поэтому можем альтернативно рассмотреть распределение филаментов по их проводимости с помощью функции плотности вероятности (PDF) (γ). Проводимость всей НК-структуры (в безразмерной форме, где 1 соответствует состоянию с низким сопротивлением LRS, а HRS для удобства записи

и без ограничения общности обозначается нулевым значением γ) тогда определяется как

$$G \equiv \int_0^1 \eta(\gamma) d\gamma. \quad (7)$$

Когда к структуре прикладывается импульс напряжения, филаменты в разной степени изменяют свою длину и, следовательно, проводимость в соответствии с уравнением (6). Следовательно, исходное распределение $\eta(\gamma)$ заменяется некоторым новым распределением $\eta^*(\gamma)$, тогда вариация проводимости всей НК-структуры дается выражением

$$\Delta G = \int_0^1 (\eta^*(\gamma) - \eta(\gamma)) d\gamma. \quad (8)$$

Заметим, что, когда происходит изменение $\Delta\gamma$, часть филаментов $\eta(\gamma - \Delta\gamma) d(\gamma - \Delta\gamma)$ с проводимостью $\gamma - \Delta\gamma$ обуславливает вклад $\eta^*(\gamma) d\gamma$ в новое распределение филаментов, т.е. $\eta(\gamma - \Delta\gamma) d(\gamma - \Delta\gamma) = \eta^*(\gamma) d\gamma$, следовательно

$$\eta^*(\gamma) = \eta(\gamma - \Delta\gamma)(1 - \Delta\gamma'(\gamma)). \quad (9)$$

Подставляя найденное выражение в (8), находим:

$$\begin{aligned} \Delta G &= \int_0^1 \gamma [\eta(\gamma - \Delta\gamma)(1 - \Delta\gamma') - \eta(\gamma)] d\gamma \approx \\ &\approx \int_0^1 \gamma [(\eta - \eta' \Delta\gamma)(1 - \Delta\gamma') - \eta] d\gamma = \\ &= - \int_0^1 \gamma (\eta \Delta\gamma)' d\gamma + \\ &+ \int_0^1 \gamma \Delta\gamma \Delta\gamma' \eta' d\gamma = \int_0^1 \eta \Delta\gamma d\gamma - \int_0^1 \eta (\gamma \Delta\gamma \Delta\gamma')' d\gamma \approx \\ &\approx \int_0^1 \eta(\gamma) \Delta\gamma(\gamma) d\gamma. \end{aligned} \quad (10)$$

При выводе (10) первый переход с приближенным равенством проведен за счет разложения $\eta(\gamma - \Delta\gamma)$ в ряд Тейлора до линейного по $\Delta\gamma$ слагаемого, а второй приближенный переход осуществлен с учетом малости квадратичного по $\Delta\gamma$ интегрального слагаемого (соответственно, по $\Delta\gamma'$ тоже, так как безразмерные $\Delta\gamma$ и $\Delta\gamma'$ одного порядка малости согласно (6)). Кроме того, в предпоследнем переходе использовалось интегрирование по частям и тот факт, что $\Delta\gamma(\gamma)$ на обоих пределах интегрирования равно 0.

Таким образом, изменение проводимости всей НК-структуры в случае малых изменений проводимости каждого филамента в отдельности может

быть рассчитано как среднее изменение проводимости филаментов структуры.

Приведенные выше соображения имеют довольно общий характер, и результат в терминах ΔG сильно зависит от: 1) конкретной формы уравнения типа (6) однофиламентной модели для изменения проводимости $\Delta\gamma(\gamma)$, с одной стороны, и 2) конкретной PDF для проводимости каналов в многофиламентной модели РП мемристивной структуры, с другой стороны. Истинное распределение филаментов как по длине, так и проводимости имеет скорее всего сложный характер и вряд ли доступно для исчерпывающего экспериментального изучения. Более того, истинное распределение должно подчиняться найденному транзиентному условию (9). Подобрать такое распределение, даже в модельном виде, представляется трудной задачей. В то же время для грубой оценки можем попытаться приблизить его некоторым простым и разумным с физической точки зрения распределением, например экспоненциальным распределением зазоров по толщине:

$$\rho(x) = x_0^{-1} \exp\left(-\frac{L-x}{x_0}\right), \quad (11)$$

где x_0 – характерная безразмерная толщина зазора, которая определяет проводимость НК-структуры: чем меньше x_0 , тем выше сопротивление, и наоборот; $L = 2l_{\max}/a_{\text{эфф}}$ (см. выше). Отметим, что формально носителем x в распределении (11) выступает диапазон значений $(-\infty, L]$, тогда как реальные x не могут принимать отрицательных значений. В то же время, как увидим ниже, это формальное ограничение не является препятствием для целей оценочного рассмотрения. Действительно, в соответствии с разрабатываемым подходом необходимо перейти от распределения по толщине зазора филаментов к распределению по их проводимости. Для этого x в (11) надо выразить через γ . Использование для этих целей уравнения (2) неудобно в силу его трансцендентности и, соответственно, неразрешимости в элементарных функциях. Вместо него используем уравнение без предэкспоненциального множителя x в знаменателе:

$$\gamma(x) = \frac{c}{c + xe^x} \approx \frac{c}{c + e^x}, \quad (12)$$

которое приблизительно справедливо в случае больших x , когда экспоненциальный множитель превалирует. В то же время в случае использования в качестве базового распределения зависимости (11) приближение (12) становится оправданным при всех значениях x , поскольку обуславливает изменение проводимости от минимального значения ($\sim c/(c + e^L)$) до максимального $\gamma = 1$ при, формально, $x = -\infty$. Применяя (12), с одной стороны, и используя условие для замены пере-

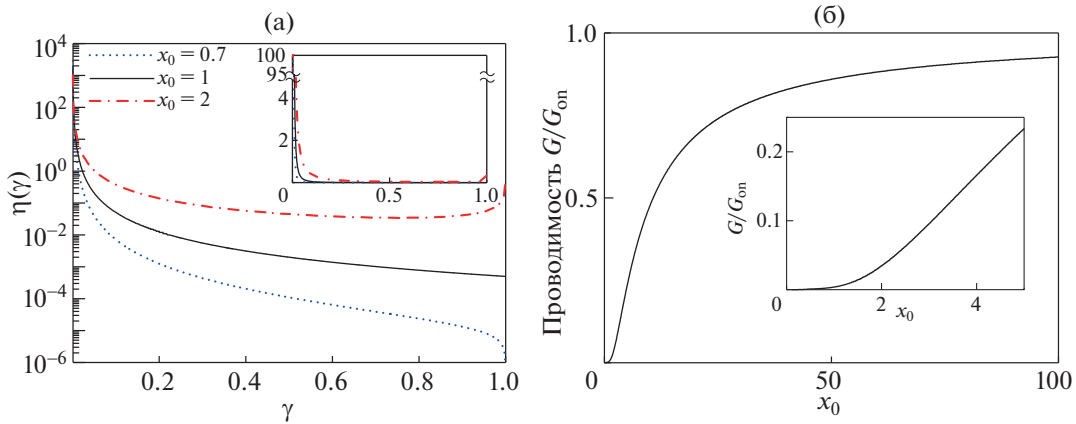


Рис. 5. Плотность распределения (13) $\eta(\gamma)$ по проводимости филаментов в многофиламентной модели РП НК-мемристора. На вставке в линейном масштабе с разрывом по оси ординат показаны нижние значения распределения: заметные субпопуляции филаментов имеются в основном вблизи $\gamma = 0$ и существенно меньшие субпопуляции появляются около $\gamma = 1$ для $x_0 > 1$ (а). Модельная проводимость НК-структуры в зависимости от параметра x_0 распределения (б). Наблюдается насыщение проводимости с ростом x_0 . На вставке показан начальный участок той же зависимости.

менной в распределении $\rho(x(\gamma))dx = \eta(\gamma)d\gamma$, получим

$$\eta(\gamma) = x_0^{-1} \left(\frac{c}{e^L}\right)^{1/x_0} \gamma^{-\frac{1}{x_0}-1} (1-\gamma)^{\frac{1}{x_0}+1}. \quad (13)$$

Распределение (13) является ключевым для целей исследования. Оно имеет довольно простой вид, хотя и не интегрируемо в элементарных функциях; определено в диапазоне от $\gamma_{\min} = c/(c + e^L)$ до $\gamma_{\max} = 1$, т.е. не содержит физически несостоятельных значений проводимости γ (в отличие от базового $\rho(x)$ по отношению к x) и потому может быть использовано для получения средних величин с использованием формул (2) и (6) однофиламентной модели. В определенном смысле модельное распределение (13) стало независимым от порождающего его $\rho(x)$, как если бы мы угадали его вид изначально, без использования базового распределения.

Еще раз подчеркнем формальность значений x в базовом распределении (11): истинная толщина зазора между краем филамента и нижним электродом структуры не может принимать отрицательных значений. Тем не менее распределение типа (11) легко перенормировать на диапазон значений $x \in [0, L]$ и тогда использовать для вывода распределения по значениям проводимости точное выражение в (12) со слагаемым xe^x в знаменателе. В этом случае максимальное значение проводимости $\gamma = 1$ достигается, как и должно, при физически состоятельном $x = 0$, а не формальном $x = -\infty$. К сожалению, для рассматриваемого типа прыжковой проводимости с нерезонансным туннелированием такой вывод можно провести только численно ввиду трансцендент-

ного характера уравнения (12) с точным равенством относительно x . Качественно это приведет к более резким изменениям проводимости вблизи $\gamma \approx 1$ с переходом к пределу $\Delta\gamma \rightarrow \infty$ при $x \rightarrow 0$, что видно уже из уравнения (4), для которого отмечено также эмпирически обусловленное минимальное значение $x \approx 1$. Более резкие скачки проводимости подгруппы филаментов с $\gamma \approx 1$ могут обеспечить лучшее соответствие аппроксимирующих кривых экспериментальным данным на рис. 6 (см. ниже), особенно в точке перегиба, которая должна стать резче в соответствии с характером эмпирических зависимостей (рис. 1). В то же время целью настоящего исследования являлось получение именно относительно простой аналитической (а не табличной) формы для приближенного распределения филаментов по проводимости, с помощью которой легко проанализировать как сам качественный характер рассматриваемого распределения, так и напрямую вычислить ожидаемые значения любых интересующих переменных. Работу по выводу и применению более точной модели распределения в табличной форме планируется выполнить в дальнейшем.

Распределение $\eta(\gamma)$, так же как и базовая зависимость (11), определяется характеристическим параметром x_0 , который может принимать любые положительные значения: чем больше его значение, тем ближе распределение $\eta(\gamma)$ к состоянию LRS (рис. 5а). Таким образом, x_0 задает значение проводимости всей структуры НК-мемристора. Так, с ростом x_0 от величины, меньшей 1, до значения около 2 в распределении $\eta(\gamma)$ появляются небольшие субпопуляции филаментов со значениями проводимости вблизи $\gamma = 1$ (вставка к рис. 5а), которые в основном определяют общую

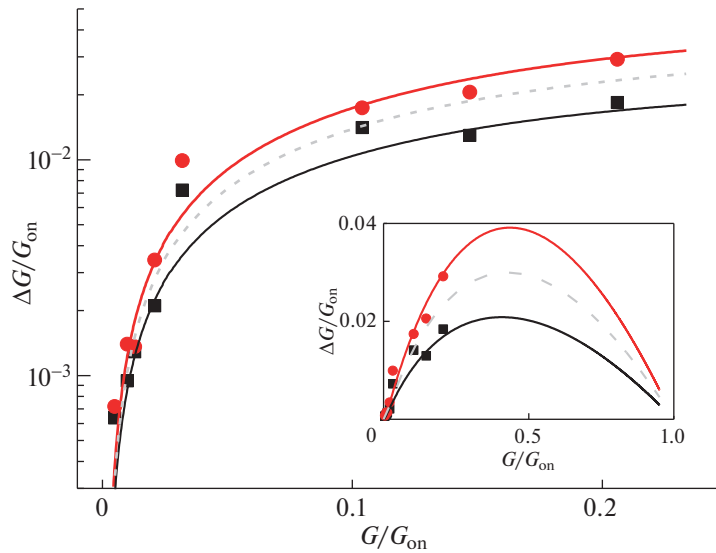


Рис. 6. Модельные зависимости усредненной с использованием многофиламентного модельного распределения (13) вариации проводимости (6) под действием импульса напряжения, приложенного к мемристивной НК-структуре, от начального значения проводимости мемристора — без учета (пунктирные кривые) и с учетом диффузии кислородных вакансий (сплошные кривые: красные — диффузия и дрейф сонаправлены, черные — противоположно направлены). Точки — экспериментальные данные. Вставка демонстрирует ту же зависимость, но в линейном масштабе и практически во всем диапазоне изменения проводимости.

проводимость структуры, что видно по увеличению скорости роста общей проводимости, начиная с $x \approx 2$ (вставка на рис. 5б). Это коррелирует с традиционным предположением в рамках многофиламентного подхода о том, что лишь небольшая доля филаментов с высокой проводимостью из их общего числа дает наибольший вклад в проводимость всей структуры в целом. Отметим, что нормировка модельного распределения (13) на 1 следует из его вывода из нормированного базового распределения (11) и подтверждается численным интегрированием. Кажущееся несоответствие нормировке, исходя из анализа рис. 5а, на котором кривые для более высоких значений x_0 визуально расположены выше во всем диапазоне изменения проводимости, объясняется тем, что чем меньше x_0 , тем большая часть филаментов обладает проводимостью, близкой к 0. Этого не видно на представленном рис. 5а из-за слишком резкого характера спада плотности распределения $\eta(\gamma)$ вблизи 0.

С использованием распределения (13) можно вычислить любые “макроскопические” средние значения величин. В частности, среднее значение проводимости филаментов, определяющее проводимость мемристивной НК-структуры в целом, продемонстрировано на рис. 5б. Наблюдается ожидаемое насыщение проводимости (т.е. ее приближение к максимальному значению G_{on}) с ростом параметра распределения x_0 .

На рис. 6 пунктирными серыми кривыми представлена аппроксимация экспериментальных данных изменения общей проводимости

структуры многофиламентной модельной зависимостью (10) при подгонке следующих параметров модели: отношения g_{on}/g_{off} для единичного филамента, энергии активации миграции кислородных вакансий θ , характерной температуры Джоулева нагрева высокопроводящего филамента τ , а также параметра модели x_{eff} . Все прочие параметры модели были фиксированы их указанными выше значениями, полученными из простых физических соображений или из табличных данных. С учетом простоты и приближенного характера модели наблюдается вполне удовлетворительное соответствие, особенно в сравнении с результатом аппроксимации однофиламентной модельной зависимостью (вставка на рис. 4). Более того, $\Delta G/G_{on}$ оказывается малым во всем диапазоне относительной проводимости G/G_{on} , что говорит о применимости разработанной модели малых приращений в рассматриваемом случае.

Наилучшее соответствие наблюдается при следующих параметрах аппроксимации: $\theta = 27$ (т.е. энергия активации движения вакансий $E_a \approx 0.7$ эВ, в полном согласии с указанным выше диапазоном предполагаемых значений от 0.5 до 1 эВ); $\tau = 0.44$, что отвечает характерной температуре нагрева филамента до $\sim 160^\circ\text{C}$ (необходимо подчеркнуть об условности такого параметра, как температура филамента нанометровых размеров, поэтому к рассматриваемому параметру следует относиться лишь как к некоей эффективной величине модели); $x_{eff} = 2.1$; и, наконец, $g_{on}/g_{off} = 2000$. Значение отношения предельных сопротивлений

для отдельного филамента оказывается на 1–2 порядка величины выше, чем для мемристорной структуры в целом, что может быть интерпретировано как то, что лишь малая часть площади нижнего контакта мемристорного элемента в LRS занята высокопроводящими филаментами: коэффициент заполнения $K_c \sim 20–100/2000 \approx 1–5\%$ площади, если отношение $R_{\text{off}}/R_{\text{on}} \approx 20–100$ для структуры в целом. Это выглядит правдоподобным результатом, по порядку величины согласуется с оценкой $K_c \approx 1\%$ по емкостным измерениям НК-структуры (разд. “Экспериментальные свидетельства в пользу многофиламентного механизма РП” и [30]) и в настоящей работе получено напрямую из соответствия эмпирических данных по изменению проводимости и расчетных зависимостей, полученных с использованием модельного многофиламентного распределения.

Можно получить еще более точное соответствие эксперименту, если задаться целью хотя бы в грубом приближении учесть наряду с дрейфом в электрическом поле диффузию вакансий кислорода на краю филамента, где существует градиент концентрации V_0 . Предположим для простоты, что этот градиент является постоянным вне зависимости от проводимости (и, соответственно, длины) филамента. Далее упрощая реальную ситуацию, оценим диффузионное смещение края филамента как $v_D \Delta t$, где $v_D = -D \nabla n_V / n_V$ – скорость диффузии против градиента концентрации ∇n_V , а n_V – концентрация кислородных вакансий со стороны высокопроводящей части филамента. Конечно, при наличии градиента происходит постоянное смещение края филамента, но оно ничтожно в случае отсутствия джоулева разогрева ввиду экспоненциальной зависимости коэффициента диффузии D от температуры, отмеченной в (5), поэтому учитывается только в промежуток времени Δt , в течение которого прикладывается импульс напряжения к структуре.

При указанных допущениях в выражение (3) добавляется диффузионное слагаемое как составляющая Δx вида $\pm \frac{2D\Delta t}{a_{\text{eff}}} \left| \frac{\nabla n_V}{n_V} \right|$, где знак выбирается в зависимости от потенциации (знак “+”) или депрессирования (знак “–”) проводимости структуры приложенным импульсом напряжения. Выражение (6) переписывается с учетом диффузии следующим образом:

$$|\Delta \gamma(\gamma)| \approx \Gamma_0 \gamma (1 - \gamma) \exp\left(-\frac{\theta}{1 + \gamma \tau}\right) \times \left[(1 - \gamma) \pm x_{\text{eff}} \frac{kT_0 a_{\text{eff}} \nabla n_V}{eV_{\text{sp}} 2 n_V} \right]. \quad (14)$$

Слагаемое со знаком “±” в правой части формулы (14) отражает в простейшем варианте влия-

ние диффузии кислородных вакансий на изменение проводимости единичного филамента, и будем считать его дополнительным постоянным подгоночным параметром модели.

Сплошные кривые на рис. 6 демонстрируют решение задачи аппроксимации с учетом фиксированного диффузионного слагаемого в (14), которое было выбрано положительным для потенциации (диффузия сонаправлена с дрейфом, $\Delta t > 0$ на рис. 3, красные кривые на рис. 6) и отрицательным для депрессирования проводимости мемристора (диффузия противоположна дрейфу, $\Delta t < 0$ на рис. 3, черные сплошные кривые на рис. 6). Очевидно более качественное соответствие теории эксперименту, которое наблюдается при значении параметра $x_{\text{eff}} \frac{kT_0 a_{\text{eff}} \nabla n_V}{eV_{\text{sp}} 2 n_V} \approx 0.05$, что отве-

чает величине $\left(\frac{\nabla n_V}{n_V}\right)^{-1} \approx a_{\text{eff}}/9 \approx 0.5$ нм. Это означает, что диффузионное размытие края филамента оценивается примерно в 5 \AA , что представляется физически правдоподобным значением и косвенно подтверждает общую состоятельность разработанной модели. Важно, что все прочие параметры модели имеют те же значения, что и в случае аппроксимации без учета диффузии (пунктирные кривые на рис. 6).

Таким образом, вся совокупность представленных модельных данных и их сравнение с экспериментальными зависимостями вариации проводимости НК-мемристора под действием приложенных импульсов напряжения свидетельствуют в пользу многофиламентного характера РП. Распределений филаментов по значениям проводимостей для структуры в HRS наиболее вероятно описывается подавляющим большинством филаментов в высокорезистивном состоянии (с большой толщиной зазора между границей высокопроводящей части и нижним электродом) с небольшой (коэффициент поверхностного заполнения электрода $K_c = 0 - 0.05\%$) субпопуляцией филаментов в низкорезистивном состоянии. Когда высокопроводящие каналы практически отсутствуют, общая проводимость структуры мала и медленно меняется с увеличением параметра x_0 распределения (рис. 5б, вставка), определяющего его степень смещенности в сторону LRS (рис. 5а). При некотором значении параметра $x_0 \sim 1.5$ доля LRS-филаментов начинает составлять $g_{\text{off}}/g_{\text{on}} \sim 1/2000$ от площади минимального из электродов мемристорной структуры, из-за чего проводимость высокопроводящих филаментов становится сравнимой с проводимостью всей прочей низкопроводящей части структуры, и ее общее сопротивление с ростом x_0 начинает быстро падать (рис. 5б, вставка). Разумно предположить, что точка перегиба как на экспериментальной, так и теоретических

зависимостях вариации проводимости на рис. 3, 5 и 6 (примерно при $G/G_{on} = 0.03$, что соответствует $x_0 \approx 2$) обусловлена эффектом резкого роста проводимости НК-структуры за счет формирования достаточного числа высокопроводящих филаментов, шунтирующих проводимость остальной части структуры. Далее проводимость НК-мемристора растет практически линейно с увеличением параметра x_0 вплоть до значений ~ 20 за счет образования все новых филаментов в LRS-состоянии, после чего наблюдаются насыщение общей проводимости и ее асимптотический выход на значение G_{on} при заполнении $K_c = (G_{on}/G_{off})/(g_{on}/g_{off}) \approx \approx 20-100/2000 = 1-5\%$ от площади минимального из контактов НК-структуры филаментами в высокопроводящем состоянии.

Для подтверждения указанной интерпретации оценим коэффициент заполнения НК-структуры в LRS на основе следующих простых соображений. В точке перегиба на кривых вариации проводимости ($G/G_{on} \approx 0.03$) $G \propto g_{off}(S - S_c) + g_{on}S_c \approx \approx g_{off}S \left(1 + \frac{g_{on}S_c}{g_{off}S}\right) \equiv g_{off}S \cdot 2$, где S – площадь минимального по размеру электрода мемристора, а $S_c \ll S$ – площадь электрода, занятая при данном значении проводимости высокопроводящими филаментами. Последний переход к $2g_{off}S$ правомочен по той причине, что в точке перегиба, согласно нашему предположению, сопротивление высокопроводящих филаментов сравнимо по величине с сопротивлением остальной части активного слоя мемристивной структуры. В случае мемристора в LRS можно записать аналогично:

$G_{on} \propto g_{off}S \left(1 + \frac{g_{on}S_{c,on}}{g_{off}S}\right)$, где $S_{c,on}$ – площадь заполнения для структуры в низкорезистивном состоянии. Тогда $G/G_{on} = 2/\left(1 + \frac{g_{on}S_{c,on}}{g_{off}S}\right)$, откуда

получаем искомую оценку $K_{c,on} \equiv \frac{S_{c,on}}{S} = = \frac{g_{off}}{g_{on}} \left(2 \frac{G_{on}}{G} - 1\right) \approx 0.03$, что прекрасно согласуется

с найденным выше диапазоном коэффициента заполнения для НК структуры в LRS от 1 до 5% и соответствует реалистичному значению отношения $R_{off}/R_{on} \approx 2000 \times 0.03 = 60$ для НК-структуры в целом. Следовательно, в точке перегиба кривых в логарифмическом масштабе на рис. 3, т.е. вблизи $G \approx 0.03G_{on}$, суммарная проводимость высокопроводящих филаментов действительно становится сравнимой с проводимостью остальной части структуры, и наше модельное представление о многофиламентном механизме РП получает дополнительное подтверждение.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Впервые предложен явный вид модельного распределения филаментов по значениям проводимости и с его помощью получены реалистичные оценки изменения общей проводимости НК мемристивной структуры под действием импульсов напряжения. Объяснены особенности на экспериментальных зависимостях пластичности мемристоров (точка перегиба при переходе из LRS в HRS, общая амплитуда наблюдаемых вариаций проводимости, различие кривых депрессирования и потенциации) с использованием актуальных физических процессов и реалистичных значений параметров модели. Вся совокупность данных свидетельствует в пользу многофиламентности РП в НК-мемристорах на основе $LiNbO_3$, что говорит о принципиальной и практической возможности градуального изменения их резистивных состояний и, следовательно, перспективности для применения в НВС.

Разработанная модель РП справедлива только для небольших изменений проводимости. В случае многих мемристивных МДМ-структур, описанных в литературе, ширина зазора, определяющая общее сопротивление, довольно мала (порядка единиц нанометров и менее). Тогда совсем незначительные смещения краев филаментов, даже в масштабе нескольких межатомных расстояний, могут существенно повлиять на общую проводимость структуры, и наш подход становится неприменимым, хотя представленное качественное рассмотрение многофиламентного РП остается справедливым в общих чертах.

При выводе в качестве ключевого приближения использовалось предположение о прыжковом характере проводимости структуры с неупругим резонансным туннелированием по точечным дефектам в диэлектрической прослойке (с высокой плотностью локализованных состояний на уровне Ферми $\sim (10^{21}-10^{22}) \text{ эВ}^{-1} \text{ см}^{-3}$). Данное предположение вполне может быть справедливо для довольно широкого класса аморфных диэлектриков, используемых для создания мемристивных структур типа МДМ. Таким образом, для этих структур возможно применение предлагаемого теоретико-модельного подхода для установления как самого характера РП, так и особенностей многофиламентного РП с микроскопической точки зрения. Надеемся, это будет способствовать дальнейшему совершенствованию как самой микроархитектуры, так и технологии создания мемристивных структур для нейроморфных и других приложений.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант № 22-19-00171) с использованием оборудования Ресурсного центра НИЦ “Курчатовский институт”.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Xia Q., Yang J.J. // Nat. Mater. 2019. V. 18. № 4. P. 309.
<https://doi.org/10.1038/s41563-019-0291-x>
2. Wang Z., Wu H., Burr G.W. et al. // Nat. Rev. Mater. 2020. V. 5. № 3. P. 173.
<https://doi.org/10.1038/s41578-019-0159-3>
3. Zahoor F., Azni Zulkifli T.Z., Khanday F.A. // Nanoscale Res. Lett. 2020. V. 15. № 1. P. 90.
<https://doi.org/10.1186/s11671-020-03299-9>
4. Emelyanov A.V., Nikiruy K.E., Serenko A.V. et al. // Nanotechnology. 2020. V. 31. № 4. P. 045201.
<https://doi.org/10.1088/1361-6528/ab4a6d>
5. Huang W., Xia X., Zhu C. et al. // Nano-Micro Lett. 2021. V. 13. № 1. P. 85.
<https://doi.org/10.1007/s40820-021-00618-2>
6. Demin V.A., Nekhaev D.V., Surazhevsky I.A. et al. // Neural Networks. 2021. V. 134. P. 64.
<https://doi.org/10.1016/j.neunet.2020.11.005>
7. Lanza M., Sebastian A., Lu W.D. et al. // Science. 2022. V. 376. № 6597.
<https://doi.org/10.1126/science.abj9979>
8. Matsukatova A.N., Iliasov A.I., Nikiruy K.E. et al. // Nanomaterials. 2022. V. 12. № 19. P. 3455.
<https://doi.org/10.3390/nano12193455>
9. Ielmini D. // Semicond. Sci. Technol. 2016. V. 31. № 6. P. 063002.
<https://doi.org/10.1088/0268-1242/31/6/063002>
10. del Valle J., Ramirez J.G., Rozenberg M.J., Schuller I.K. // J. Appl. Phys. 2018. V. 124. № 21. P. 211101.
<https://doi.org/10.1063/1.5047800>
11. Yan Z.B., Liu J.-M. // Sci. Rep. 2013. V. 3. № 1. P. 2482.
<https://doi.org/10.1038/srep02482>
12. Shuai Y., Peng Y., Pan X. et al. // Jpn. J. Appl. Phys. 2018. V. 57. № 12. P. 121502.
<https://doi.org/10.7567/JJAP.57.121502>
13. Yoong H.Y., Wu H., Zhao J. et al. // Adv. Funct. Mater. 2018. V. 28. № 50. P. 1806037.
<https://doi.org/10.1002/adfm.201806037>
14. Qian M., Fina I., Sulzbach M.C. et al. // Adv. Electron. Mater. 2019. V. 5. № 3. P. 1800646.
<https://doi.org/10.1002/aelm.201800646>
15. Lapkin D.A., Emelyanov A.V., Demin V.A. et al. // Appl. Phys. Lett. 2018. V. 112. № 4. P. 043302.
<https://doi.org/10.1063/1.5013929>
16. Веденеев А.С., Рьльков В.В., Напольский К.С. et al. // Письма в ЖЭТФ. 2017. V. 106. № 6. P. 387.
17. Kalcheim Y., Butakov N., Vargas N.M. et al. // Phys. Rev. Lett. 2019. V. 122. № 5. P. 057601.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.122.057601>
18. Jiang H., Han L., Lin P. et al. // Sci. Rep. 2016. V. 6. № 1. P. 28525.
<https://doi.org/10.1038/srep28525>
19. Minnekhanov A.A., Shvetsov B.S., Martyshov M.M. et al. // Org. Electron. 2019. V. 74. P. 89.
<https://doi.org/10.1016/j.orgel.2019.06.052>
20. Xue W., Gao S., Shang J. et al. // Adv. Electron. Mater. 2019. V. 5. № 9. P. 1800854.
<https://doi.org/10.1002/aelm.201800854>
21. Chen J.-Y., Huang C.-W., Chiu C.-H. et al. // Adv. Mater. 2015. V. 27. № 34. P. 5028.
<https://doi.org/10.1002/adma.201502758>
22. Luo Y., Zhao D., Zhao Y. et al. // Nanoscale. 2015. V. 7. № 2. P. 642.
<https://doi.org/10.1039/C4NR04394D>
23. Martyshov M.N., Emelyanov A.V., Demin V.A. et al. // Phys. Rev. Appl. 2020. V. 14. № 3. P. 034016.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.14.034016>
24. Рьльков В.В., Николаев С.Н., Демин В.А. и др. // Журнал экспериментальной и теоретической физики. 2018. № 3. С. 424.
<https://doi.org/10.7868/S0044451018030094>
25. Леванов В.А., Емельянов А.В., Демин В.А. и др. // Радиотехника и электроника. 2018. № 5. С. 489.
<https://doi.org/10.7868/S0033849418050145>
26. Никируй К.Э., Емельянов А.В., Мацукатова А.Н. и др. // Физика твердого тела. 2022. Т. 64. № 11. С. 1690.
<https://doi.org/10.21883/FTT.2022.11.53321.410>
27. Choi B.J., Torrezan A.C., Norris K.J. et al. // Nano Lett. 2013. V. 13. № 7. P. 3213.
<https://doi.org/10.1021/nl401283q>
28. Li W., Liu X., Wang Y. et al. // Appl. Phys. Lett. 2016. V. 108. № 15. P. 153501.
<https://doi.org/10.1063/1.4945982>
29. Nikiruy K.E., Emelyanov A.V., Demin V.A. et al. // AIP Adv. 2019. V. 9. № 6. P. 065116.
<https://doi.org/10.1063/1.5111083>
30. Martyshov M.N., Emelyanov A.V., Demin V.A. et al. // Phys. Rev. Appl. 2020. V. 14. № 3. P. 034016.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.14.034016>
31. Rylkov V., Sitnikov A., Nikolaev S. et al. // IEEE Magn. Lett. 2019. V. 10. P. 1–4.
<https://doi.org/10.1109/LMAG.2019.2955060>
32. Li Y., Wang Z., Midya R. et al. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2018. V. 51. № 50. P. 503002.
<https://doi.org/10.1088/1361-6463/aade3f>
33. Glazman L.I., Matveev K.A. // J. Exp. Theor. Phys. 1988. V. 67. № 6. P. 1276.
34. Pollak M., Hauser J.J. // Phys. Rev. Lett. 1973. V. 31. № 21. P. 1304.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.31.1304>
35. Raikh M.E., Ruzin I.M. // JETP Lett. 1986. V. 43. № 9. P. 437.
36. Shklovskii B.I., Efros A.L. Electronic Properties of Doped Semiconductors. Berlin Heidelberg New York Tokyo: Springer-Verlag, 1984. 388 p.
37. Lutsev L.V., Kalinin Y.E., Sitnikov A.V., Stognei O.V. // Phys. Solid State. 2002. V. 44. № 10. P. 1889.
<https://doi.org/10.1134/1.1514778>
38. Strukov D.B., Snider G.S., Stewart D.R., Williams R.S. // Nature. 2008. V. 453. № 7191. P. 80.
<https://doi.org/10.1038/nature06932>
39. Larentis S., Nardi F., Balatti S. et al. // IEEE Trans. Electron Devices. 2012. V. 59. № 9. P. 2468.
<https://doi.org/10.1109/LED.2012.2202320>
40. Kim S., Kim S.-J., Kim K.M., et al. // Sci. Rep. 2013. V. 3. № 1. P. 1680.
<https://doi.org/10.1038/srep01680>