

Влияние площади контактов на мемристивные характеристики структур на основе парилена в одиночной и кроссбар-геометрии

© Б.С. Швецов,^{1,2} Г.А. Юкляевских,² К.Ю. Черноглазов,¹ А.В. Емельянов¹

¹ Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“,
123098 Москва, Россия

² Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119991 Москва, Россия
e-mail: b.shvetsov15@physics.msu.ru

Поступило в Редакцию 4 июля 2023 г.

В окончательной редакции 20 сентября 2023 г.

Принято к публикации 25 сентября 2023 г.

Исследовано влияние площади и геометрии контактов на основные мемристивные характеристики структур на основе парилена. Показана независимость от площади контактов таких мемристивных характеристик, как напряжение переключений в низкоомное и высокоомное состояния, а также сопротивлений образцов в низкоомном состоянии. При этом сопротивления в высокоомном состоянии увеличиваются с уменьшением площади, что подтверждает однофиламентарную модель резистивных переключений, а также позволяет увеличить окно сопротивлений в таких структурах.

Ключевые слова: мемристоры, резистивное переключение, нейроморфные системы, парилен.

DOI: 10.61011/JTF.2023.11.56492.166-23

Введение

В последнее время активно ведутся исследования по созданию новых нейроморфных вычислительных систем (НВС) [1,2]. Это связано с тем, что нейронные сети, построенные на классической архитектуре фон Неймана, потребляют большое количество энергии при низкой эффективности. Одним из вариантов решения этой проблемы является создание принципиально новых устройств, архитектура которых основана на работе нейронных связей в биологических системах [3]. Такие нейронные сети, реализация которых осуществляется аппаратно, и называются НВС [4]. Для их создания перспективным элементом является мемристор — резистор с эффектом памяти, который может использоваться для одновременной обработки и хранения информации [5–9]. Его принцип работы основан на эффекте резистивного переключения (РП) под действием приложенного электрического поля [10]. Благодаря такому принципу мемристоры могут иметь несколько резистивных состояний и хранить заданное резистивное состояние после снятия электрического поля. Эти свойства позволяют использовать мемристоры в НВС в качестве аналогов синапсов, которые связывают нейроны в биологических системах и выполняют роль запоминающих ячеек [11].

Явление РП было обнаружено в структурах на основе как органических [12], так и неорганических [13] материалов. Изначально более популярным направлением была разработка мемристивных структур на основе неорганических материалов из-за их совместимости с кремниевыми технологиями. Однако в последнее время возрос интерес к исследованиям мемристоров на основе органических материалов, поскольку они не уступают

неорганическим материалам по основным характеристикам: отношение сопротивлений в высоко- и низкоомном состояниях, количество циклических переключений без деградации, время хранения резистивного состояния, пластичность (количество резистивных состояний и время их удержания) и др. [14,15]. При этом структуры на основе органических материалов имеют низкую стоимость и достаточно просты в производстве, а также биосовместимы. Стоит отметить, что на основе органических материалов возможно создавать мемристоры на гибких подложках [16,17]. Одним из наиболее перспективных органических материалов на данный момент является поли-*p*-ксилилен (парилен, ППК, Parylene) [17–19].

Одиночные конденсаторные структуры на основе ППК показывают хорошие мемристивные характеристики, однако для создания НВС необходимо использовать кроссбар-геометрию — набор поперечных шин электродов, между которыми находится слой диэлектрика [20]. В таких структурах мемристоры, находящиеся на пересечениях шин, выступают в роли синаптических весов НВС. На основе кроссбар-массивов можно построить формальные НВС, так как с их помощью легко реализовать операцию умножения вектора входящих импульсов на матрицу синаптических весов согласно физическим законам (законы Ома и Кирхгофа). В таких структурах информация хранится и обрабатывается непосредственно в элементах памяти, поэтому они отличаются высокой энергоэффективностью. Кроссбар-массивы открывают широкий спектр возможностей в задачах принятия решений, фото- и видеораспознавания, управления беспилотными транспортными средствами и др. Для мемри-

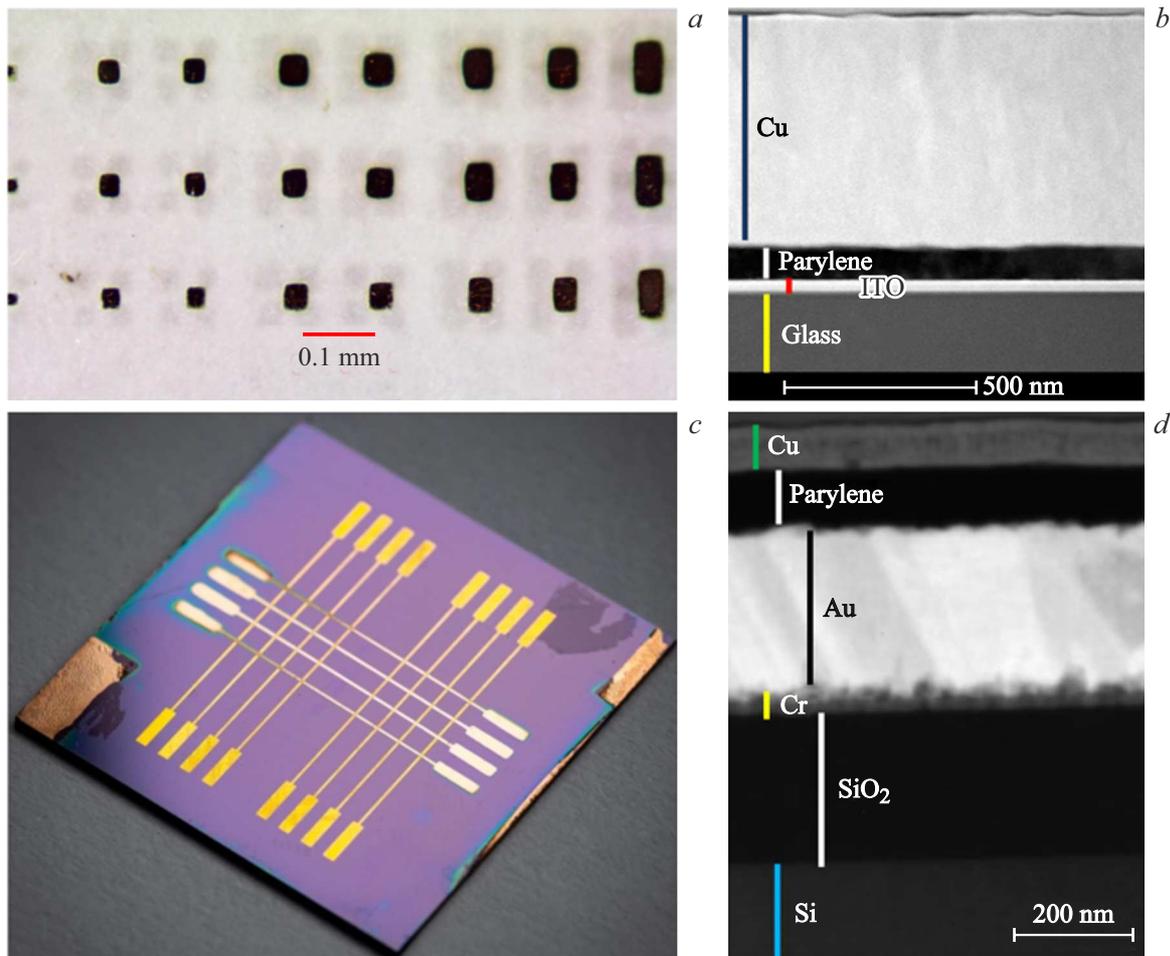


Рис. 1. Одиночные мемристивные структуры Cu/ППК/ИТО с разными площадями (а); изображение ПЭМ структуры Cu/ППК/ИТО (b); кроссбар-массивы мемристоров Cu/ППК/Au (c); изображение ПЭМ структуры Cu/ППК/Au (d).

стивных структур на основе ППК ранее не проводилось исследований зависимости сопротивлений в низко- и высокоомном состояниях от площади контактов. В то же время такие исследования важны для понимания механизма резистивного переключения в данных структурах, а также возможности их масштабирования, в том числе в кроссбар-геометрии. Поэтому целью настоящей работы являлось исследование влияния площади и геометрии контактов на основные мемристивные характеристики.

1. Материалы и методы

Были изучены мемристивные структуры Cu/ППК/ИТО в одиночной конденсаторной геометрии (рис. 1, а). На стеклянную подложку с нанесенным ИТО (оксид индия–олова), который выступал в качестве нижнего электрода, методом газофазной поверхностной полимеризации был нанесен слой ППК толщиной ~ 100 nm с помощью системы вакуумного осаждения SCS Labcoater PDS 2010. При осаждении используется уровень вакуума, достаточный для того, чтобы

газообразный мономер осаждался равномерным слоем на всю поверхность. Верхние металлические электроды представляли собой слои меди (Cu) толщиной ~ 500 nm, полученные методом магнетронного напыления через теньевую маску. Были созданы образцы с различной площадью активных электродов: $S_1 = 1$ mm², $S_2 = 0.2$ mm², $S_3 = 0.1$ mm², $S_4 = 0.08$ mm². В качестве верхнего электрода была выбрана медь из-за того, что данный материал показал наилучшие электрофизические свойства в подобных мемристивных структурах [14]. Изображение просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) исследованных одиночных образцов представлено на рис. 1, b.

Также были изучены массивы мемристоров Cu/ППК/Au в кроссбар-геометрии (рис. 1, c). Мемристоры были изготовлены на подложках SiO₂/Si, на которые был предварительно нанесен слой Si₃N₄. Для нанесения нижнего электрода из золота (280 nm) на подслое хрома (30 nm) использовался метод оптической литографии (подробности описаны в [21]). Далее методом газофазной полимеризации на поверхности был нанесен слой ППК толщиной ~ 100 nm. Затем

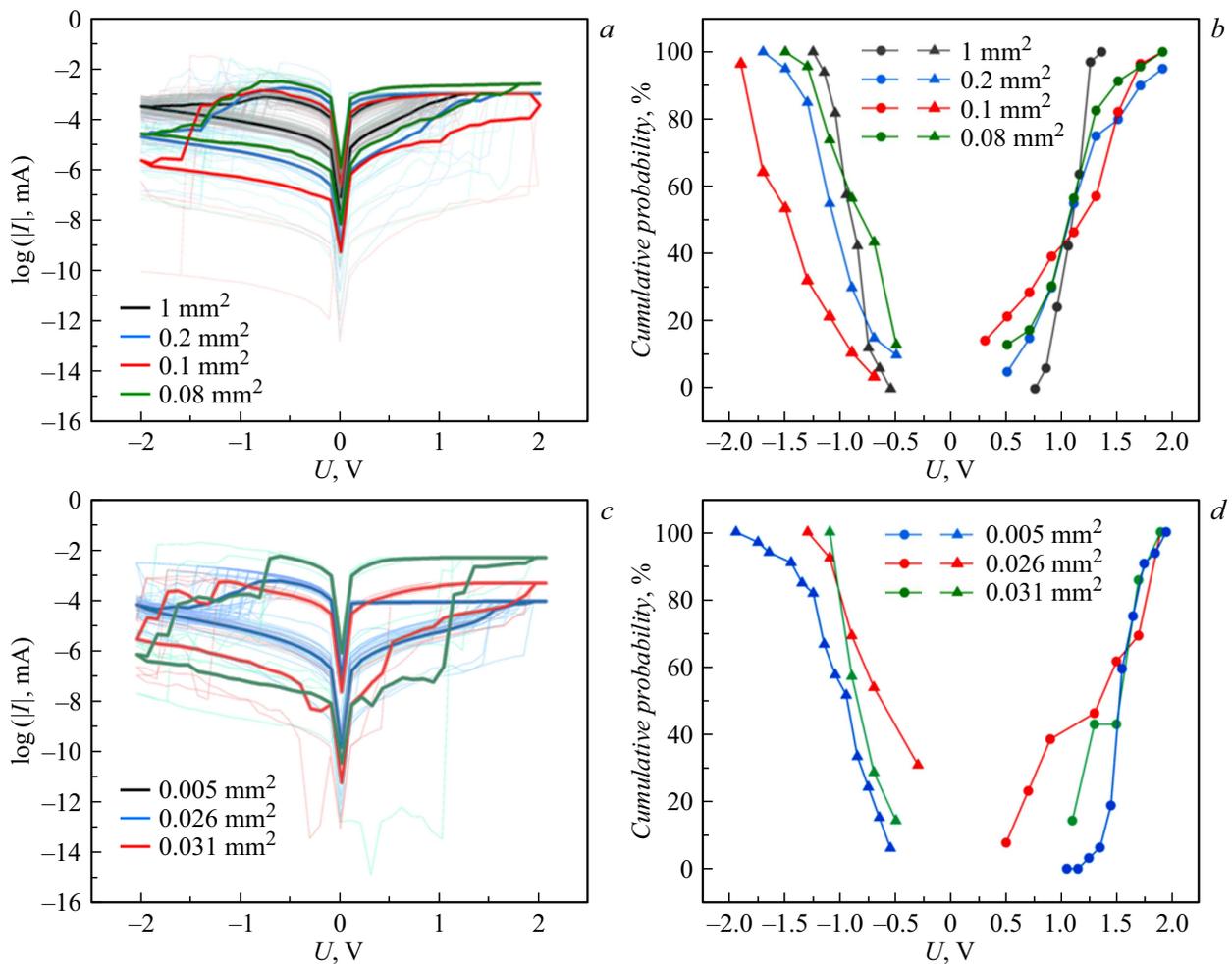


Рис. 2. ВАХ для образцов Cu/ППК/ITO (a) и их кумулятивные вероятности (b); ВАХ для образцов Cu/ППК/Au (c) и их кумулятивные вероятности (d).

напылялся слой меди методом магнетронного распыления через теньевую маску. Были изготовлены образцы с разной шириной нижнего контакта (20, 100, 150 μm). Площади этих образцов соответственно составляли $S_{150} = 0.026 \text{ mm}^2$ (ширина медного контакта составляла 170 μm), $S_{100} = 0.031 \text{ mm}^2$ (ширина медного контакта составляла 310 μm), $S_{20} = 0.005 \text{ mm}^2$ (ширина медного контакта составляла 250 μm). Изображение ПЭМ одного мемристора из кроссбар-массива с шириной золотой шины в 20 μm представлено на рис. 1, d.

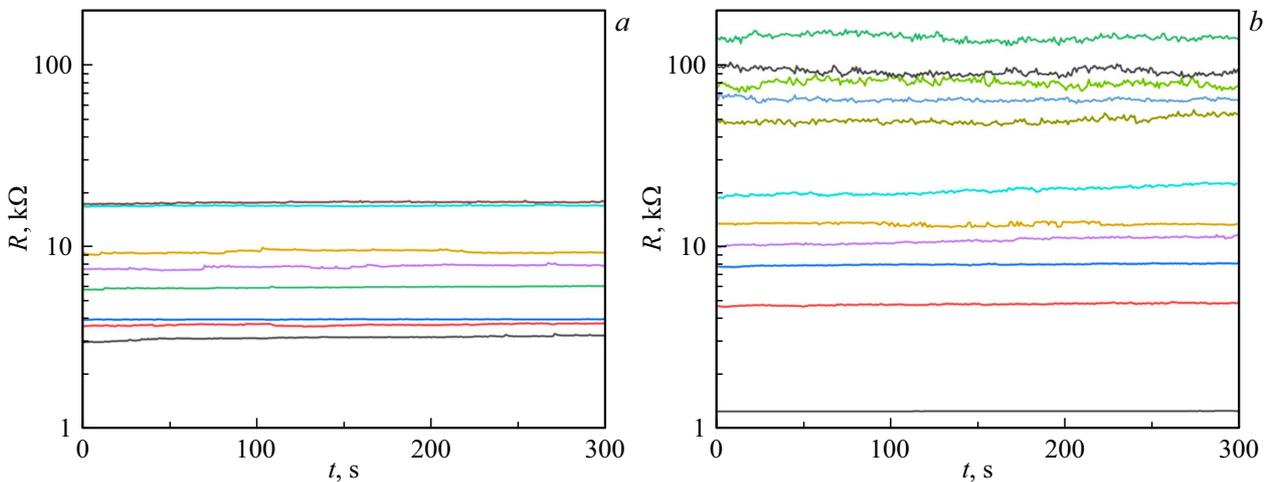
Мемристивные характеристики структур Cu/ППК/ITO и Cu/ППК/Au (напряжения переключений U_{set} , U_{reset} , сопротивления низкоомного и высокоомного состояний R_{on} и R_{off} , времена удержания резистивных состояний и количество резистивных состояний) были изучены с помощью аналитической зондовой станции Economic 4'' Probe Station (EPS4). Импульсы напряжения подавались на верхний электрод при заземленном нижнем электроде от источника-измерителя Keithley 2636B, запрограммированного в LabVIEW. Все измерения производились при комнатной температуре.

2. Результаты и их обсуждение

На рис. 2, a представлены вольт-амперные характеристики (ВАХ) в полулогарифмическом масштабе для четырех площадей одиночных образцов. Каждый цикл ВАХ измерялся путем приложения к образцу напряжения U в следующей последовательности: линейное по времени увеличение напряжения от нуля до предельного положительного значения U_+ , затем его уменьшение до предельного отрицательного значения U_- и последующее повышение до нуля. Напряжение изменялось от 2 до -2 V с шагом 0.1 V. Ток был ограничен в пределах $[-50, 1] \text{ mA}$, чтобы предотвратить перегрев и деградацию структуры. Жирная линия показывает усреднение полученных кривых ВАХ. По кривым ВАХ были определены напряжения переключений в низкоомное (U_{set}) и высокоомное (U_{reset}) состояния: за U_{set} принималось значение напряжения, при котором достигался положительный порог ограничения тока, за U_{reset} принималось значение напряжения, при котором происходило изменение знака дифференциального сопротив-

Таблица 1. Средние значения напряжений переключений одиночных образцов для каждой площади контактов

Площадь контактов	1 mm ²	0.2 mm ²	0.1 mm ²	0.08 mm ²
U_{set}, V	1.1 ± 0.1	1.1 ± 0.5	1.1 ± 0.5	1.1 ± 0.4
$U_{\text{reset}}, \text{V}$	-0.9 ± 0.2	-0.8 ± 0.4	-0.7 ± 0.4	-0.7 ± 0.3

**Рис. 3.** Стабильные резистивные состояния для одиночных образцов Cu/ППК/ИТО с площадью 1 mm² (a) и для кроссбар-образцов Cu/ППК/Au с площадью 0.005 mm² (b).

ления в отрицательной области напряжений. Полученные значения напряжения переключения U_{set} и U_{reset} , усредненные по не менее чем 5 циклам, для каждой площади представлены в табл. 1. Рис. 2, b показывает кумулятивные вероятности напряжений переключений U_{reset} и U_{set} состояния для четырех площадей одиночных образцов. Из графика видно, что разброс напряжений при переключении в низкоомное состояние для всех площадей одинаков, а для переключений в высокоомное — немного отличается. Это может быть связано с тем, что толщина ППК варьируется от образца к образцу на несколько нанометров.

На рис. 2, c представлены графики, демонстрирующие ВАХ в полулогарифмическом масштабе для трех площадей кроссбар-массивов мемристоров. Напряжение изменялось от 2 до -2 V с шагом 0.1 V . Ток был ограничен в пределах $[-5, 0.5] \text{ mA}$, чтобы предотвратить перегрев и деградацию структуры. Для разных площадей использовался разный ток ограничения из-за того, что структуры с меньшей площадью при максимальном токе ограничения деградировали быстрее, и переключение не наблюдалось. Жирная линия показывает усреднение полученных ВАХ. Рис. 2, d показывает кумулятивные вероятности переключений в высокоомное и низкоомное состояния для трех площадей кроссбар-массивов мемристоров. Стоит отметить, что в пассивных кроссбар-архитектурах большую проблему представляют собой токи утечки [22,23]. Для избавления от указанной проблемы используются либо специальные архитектуры (с транзистором или с селектором), либо

специальные схемы считывания, такие, как заземление невыбранных электродов или так называемые схемы V/2 или V/3 [22,23]. Первый вариант требует сложных технологических процессов, реализация которых выходит за рамки настоящей работы, а второй — приводит к увеличенному энергопотреблению. В настоящей работе после работы с каждым мемристором в кроссбаре он оставался в состоянии R_{off} , что позволяло минимизировать возникающие токи утечки. При этом полученные мемристивные характеристики не зависели от местоположения мемристора в кроссбаре (разброс ВАХ разных мемристоров в кроссбар-матрице не превышает разброса одного мемристора от цикла к циклу), что говорит о низком влиянии токов утечки на полученные характеристики.

Так же как и в случае с одиночными образцами, были посчитаны средние значения напряжений переключения. Результаты представлены в табл. 2. Как видно из таблицы, напряжения переключения в высокоомное и низкоомное состояния одинаковы для разных площадей с учетом погрешности.

Помимо этого, были исследованы многоуровневые РП мемристивных структур с площадями $S_1 = 1 \text{ mm}^2$ и $S_{20} = 0.005 \text{ mm}^2$, как крайние из диапазона исследованных площадей (рис. 3). Для получения стабильного резистивного состояния на структуру подавались импульсы длительностью 100 ms , амплитуда напряжения которых возрастала с шагом 0.1 V до тех пор, пока не происходило переключение в заданное состояние. После получения нужного резистивного состояния один раз в

Таблица 2. Средние значения напряжений переключений кроссбар-массивов для каждой площади контактов

Площадь контактов	0.005 mm ²	0.026 mm ²	0.031 mm ²
U_{set}, V	1.5 ± 0.3	1.3 ± 0.6	1.5 ± 0.3
U_{reset}, V	-1.1 ± 0.4	-0.9 ± 0.4	-0.8 ± 0.2

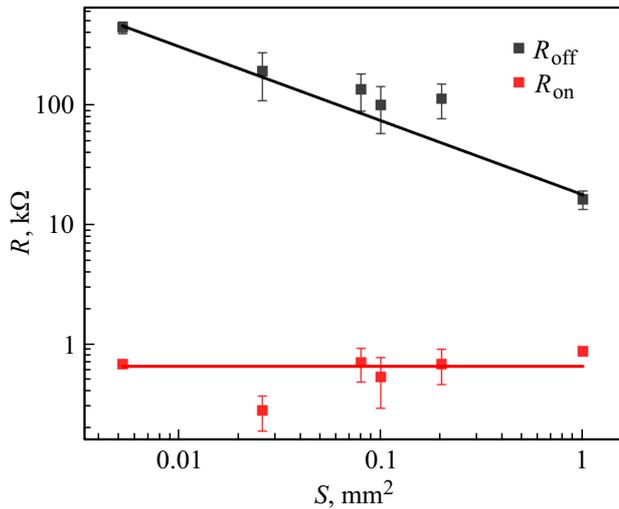


Рис. 4. Зависимость сопротивлений низкоомного и высокоомного состояний от площади контактов.

секунду подавался считывающий импульс с напряжением чтения 0.1 V, который давал информацию о сопротивлении образца [24]. На рис. 3, *a* продемонстрировано 8 стабильных резистивных состояний для площади $S_1 = 1 \text{ mm}^2$ одиночного образца, каждое из которых хранилось не менее 300 s. На рис. 3, *b* продемонстрировано 10 стабильных резистивных состояний для площади $S_{20} = 0.005 \text{ mm}^2$ образца кроссбар-массива, каждое из которых хранилось не менее 300 s. Из графиков видно, что с уменьшением площади количество стабильных резистивных состояний может быть увеличено за счет увеличения окна сопротивлений R_{off}/R_{on} . При этом в диапазоне увеличения значений R_{off} для структур с меньшей площадью удается установить несколько стабильных резистивных состояний (рис. 3, *b*). По-видимому, это происходит за счет изменения расстояния между разорванными концами металлического мостика.

По полученным результатам был построен график зависимости сопротивления низкоомного и высокоомного состояний от площади контактов в двойном логарифмическом масштабе, который представлен на рис. 4. Как видно из рисунка, сопротивления низкоомного состояния (красные точки (в онлайн версии)) сохраняют свое значение при различных значениях площади. Небольшие отличия могут быть связаны с различной толщиной слоя ППК. В то же время сопротивления высокоомного состояния (черные точки) убывают при увеличении площади. Такое поведение объясняется од-

нофиламентарной моделью РП. Согласно этой модели, по всей площади контакта выстраивается один или малое число филаментов (металлических мостиков или проводящих каналов). Отсюда следует, что сопротивление мемристора в низкоомном состоянии определяется параметрами металлического мостика. При изменении площади контактов эти параметры не изменяются, из чего следует, что в низкоомном состоянии нет зависимости сопротивления от площади контактов. В высокоомном состоянии металлический мостик разомкнут, а сопротивление образца определяется параметрами слоя парилена. Соответственно зависимость $R_{off} = f(S)$ в двойных логарифмических координатах является линейной.

Заключение

Таким образом, в работе было исследовано влияние масштабирования мемристоров на основе ППК в кроссбар-геометрии на основные характеристики. Показано, что напряжение переключения не зависит от площади контактов. Также была выявлена независимость сопротивления в низкоомном состоянии от площади контактов. При этом сопротивление мемристоров в высокоомном состоянии оказалось обратно пропорциональным площади контактов. Все эти результаты указывают на то, что для исследованных мемристивных структур реализуется однофиламентарный характер резистивных переключений.

Результаты работы открывают возможности масштабирования мемристивных устройств в сторону уменьшения размеров с целью увеличения их количества на единице площади. Перспективность данного исследования связана с увеличением производительности НВС, а также с созданием формальных нейронных сетей, реализованных с помощью мемристоров на основе ППК, выполненных в кроссбар-геометрии.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках соглашения № 075-15-2021-1357 с использованием оборудования Ресурсных центров (НИЦ „Курчатовский институт“).

Благодарности

Авторы выражают благодарность А.А. Несмелову и Ю.В. Грищенко (НИЦ „Курчатовский институт“) за помощь в изготовлении образцов.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] D. Kuzum. *IEEE Nanotechnol. Mag.*, **12**, 4 (2018).
- [2] J. Zhu, T. Zhang, Y. Yang, R. Huang. *Appl. Phys. Rev.*, **7**, 011312 (2020). <https://doi.org/10.1063/1.5118217>
- [3] Z. Wang, H. Wu, G.W. Burr, C.S. Hwang, K.L. Wang, Q. Xia, J.J. Yang. *Nat. Rev. Mater.*, **5**, 173 (2020).
- [4] Q. Xia, J.J. Yang. *Nat. Mater.*, **18**, 309 (2019).
- [5] K. Berggren, Q. Xia, K.K. Likharev, D.B. Strukov, H. Jiang, T. Mikolajick, D. Querlioz, M. Salinga, J.R. Erickson, S. Pi, F. Xiong, P. Lin, C. Li, Y. Chen, S. Xiong, B.D. Hoskins, M.W. Daniels, A. Madhavan, J.A. Liddle, J.J. McClelland, Y. Yang, J. Rupp, S.S. Nonnenmann, K.-T. Cheng, N. Gong, M.A. Lastras-Montaño, A.A. Talin, A. Salleo, B.J. Shastri, T.F. de Lima, P. Prucnal, A.N. Tait, Y. Shen, H. Meng, C. Roques-Carmes, Z. Cheng, H. Bhaskaran, D. Jariwala, H. Wang, J.M. Shainline, K. Segall, J.J. Yang, K. Roy, S. Datta, A. Raychowdhury. *Nanotechnology*, **32**, 012002 (2021).
- [6] A.A. Koroleva, M.G. Kozodaev, Y.Y. Lebedinskii, A.M. Markeev. *Nanobiotechnology Reports*, **16** (6), 737 (2021). <https://doi.org/10.1134/S2635167621060094>
- [7] M.N. Koryazhkina, D.O. Filatov, S.V. Tikhov, A.I. Belov, D.S. Korolev, A.V. Kruglov, R.N. Kryukov, S.Y. Zubkov, V.A. Vorontsov, D.A. Pavlov, D.I. Tetelbaum, A.N. Mikhaylov, S. Kim. *Nanobiotechnology Reports*, **16** (6), 745 (2021). <https://doi.org/10.1134/S2635167621060100>
- [8] L.S. Parshina, D.S. Gusev, O.D. Khramova, A.S. Polyakov, N.N. Eliseev, O.A. Novodvorsky. *Nanobiotechnology Reports*, **16** (6), 829 (2021). <https://doi.org/10.1134/S2635167621060185>
- [9] A.N. Matsukatova, A.I. Ilyasov, K.E. Nikiruy, E.V. Kukueva, A.L. Vasiliev, B.V. Goncharov, A.V. Sitnikov, M.L. Zhanaveskin, A.S. Bugaev, V.A. Demin, V.V. Rylkov, A.V. Emelyanov. *Nanomaterials*, **12** (19), 3455 (2022). <https://doi.org/10.3390/nano12193455>
- [10] I. Valov, R. Waser, J.R. Jameson, M.N. Kozicki. *Nanotechnology*, **22**, 254003 (2011).
- [11] T. Shi, R. Wang, Z. Wu, Y. Sun, J. An, Q. Liu. *Small Struct.*, **2**, 2000109 (2021).
- [12] Y. Van De Burgt, A. Melianas, S.T. Keene, G. Malliaras, A. Salleo. *Nat. Electron.*, **1**, 386 (2018).
- [13] Y. Li, Z. Wang, R. Midya, Q. Xia, J. Joshua Yang. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **51**, 0 (2018).
- [14] A.A. Minnekhanov, A.V. Emelyanov, D.A. Lapkin, K.E. Nikiruy, B.S. Shvetsov, A.A. Nesmelov, V.V. Rylkov, V.A. Demin, V.V. Erokhin. *Sci. Rep.*, **9**, 10800 (2019).
- [15] A.A. Minnekhanov, B.S. Shvetsov, M.M. Martyshov, K.E. Nikiruy, E.V. Kukueva, M.Y. Presnyakov, P.A. Forsh, V.V. Rylkov, V.V. Erokhin, V.A. Demin, A.V. Emelyanov. *Org. Electron.*, **74**, 89 (2019).
- [16] Б.С. Швецов, А.Н. Мацукатова, А.А. Миннеханов, А.А. Несмелов, Б.В. Гончаров, Д.А. Лапкин, М.Н. Мартышов, П.А. Форш, В.В. Рыльков, В.А. Демин, А.В. Емельянов. *Письма в ЖТФ*, **45**, 40 (2019).
- [17] J.E. Kim, B. Kim, H.T. Kwon, J. Kim, K. Kim, D.W. Park, Y. Kim. *IEEE Access*, **10**, 109760 (2022).
- [18] Q. Chen, M. Lin, Z. Wang, X. Zhao, Y. Cai, Q. Liu, Y. Fang, Y. Yang, M. He, R. Huang. *Adv. Electron. Mater.*, **5**, 1800852 (2019).
- [19] A.N. Matsukatova, A.Y. Vdovichenko, T.D. Patsaev, P.A. Forsh, P.K. Kashkarov, V.A. Demin, A.V. Emelyanov. *Nano Res.*, **16**, 3207 (2023).
- [20] S. Gi, I. Yeo, M. Chu, S. Kim, B. Lee. *ISOCC 2015 — Int. SoC Des. Conf. SoC Internet Everything*, 215 (2016).
- [21] B.S. Shvetsov, A.A. Minnekhanov, A.V. Emelyanov, A.I. Ilyasov, Y.V. Grishchenko, M.L. Zhanaveskin, A.A. Nesmelov, D.R. Streltsov, T.D. Patsaev, A.L. Vasiliev, V.V. Rylkov, V.A. Demin. *Nanotechnology*, **33**, 255201 (2022).
- [22] Z. Tang, Y. Wang, Y. Chi, L. Fang. *Electronics*, **7**, 224 (2018).
- [23] V.A. Demin, I.A. Surazhevsky, A.V. Emelyanov, P.K. Kashkarov, M.V. Kovalchuk. *J. Comput. Electron.*, **19**, 565 (2020).
- [24] К.Э. Никируй, А.В. Емельянов, В.А. Демин, В.В. Рыльков, А.В. Ситников, П.К. Кашкаров. *Письма в ЖТФ*, **44**, 20 (2018).