

氧空位浓度梯度分布的非晶 WO_3 模拟忆阻器在神经形态计算中的应用*

王红军 张苗 张云飞 王鑫 周静 朱媛媛†

(陕西科技大学物理与信息科学学院, 西安 710021)

(2025年9月30日收到; 2025年10月30日收到修改稿)

非晶三氧化钨 ($\alpha\text{-WO}_3$) 材料因其高浓度氧空位、适中的带隙以及与互补金属氧化物半导体技术的兼容性, 成为非易失性电阻开关忆阻器的理想候选材料. 然而, $\alpha\text{-WO}_3$ 忆阻器在模拟开关行为上的低效表现, 阻碍了其在高效神经计算领域的应用, 而神经计算方式能够满足人工智能等数据密集型应用日益增长的需求. 本研究通过在介质层中设计氧空位 (V_{O}) 梯度分布结构, 成功实现了 $\alpha\text{-WO}_3$ 忆阻器的模拟开关功能. 采用 V_{O} 梯度分布结构的器件展现出高度可靠的模拟开关特性, 其特点包括: 低周期波动性、较高的线性增强/抑制过程、超长数据保持时间 ($>10^4$ s) 以及自限流特性. 基于该结构忆阻器的人工神经网络实现了 97.64% 的手写数字识别准确率. 此外, 我们提出了一种导电细丝演化方案, 通过形成非锥形导电细丝防止其突然形成和断裂, 实现了可控的渐进式多级电导调制. 这些研究成果确定了 V_{O} 梯度分布的 $\alpha\text{-WO}_3$ 忆阻器作为高密度神经计算平台的潜力, 为设计优化实验方案提供了宝贵思路和实用策略.

关键词: 忆阻器, 模拟电阻开关, 非晶 WO_3 , 氧空位, 神经形态计算

DOI: 10.7498/aps.75.20251348

CSTR: 32037.14.aps.75.20251348

1 引言

随着人工智能 (AI) 的迅猛发展, 暴露出传统冯·诺依曼架构的根本性缺陷, 尤其是在数据传输瓶颈和高能耗问题上表现突出. 这些技术难题制约着 AI 系统应对复杂运算需求的能力^[1,2]. 相比之下, 神经形态计算是通过电子电路或软件架构模拟神经元与突触的行为模式, 不仅能实现更高效的信息处理, 还能大幅降低能耗^[3]. 神经形态计算受生物神经系统的启发, 通过采用低功耗人工神经元和突触模拟类脑学习与记忆过程, 为计算复杂任务提供可靠解决方案^[4,5]. 因此, 迫切需要研究先进的存储材料并开发新颖的器件架构.

在新兴的非易失性存储器中, 忆阻器凭借其低

功耗、高可扩展性、优异的存储性能以及与现有互补金属氧化物半导体 (CMOS) 制造工艺的兼容性^[6-8] 脱颖而出. 其工作原理通常涉及电场驱动下材料内部的离子通量变化 (例如离子迁移或氧空位的移动), 使得内部电流和电压之间存在非线性关系, 其阻值状态由特定电压下的电流决定^[9]. 特别是能够实现连续电导调制的模拟型忆阻器, 在神经形态计算领域展现出巨大潜力^[10,11]. 通过精准复现各类神经元和突触特性, 使得模拟型忆阻器在高密度存储应用和神经形态计算架构中展现出显著优势, 因此备受科研界关注^[12].

忆阻器的电阻开关 (RS) 功能层通常由金属氧化物、钙钛矿氧化物和硫化物构成^[13,14]. 其中, 二元过渡金属氧化物展现出独特的光电子特性. 通过调节沉积条件从而精准调控氧空位的浓度, 这种可调

* 陕西省自然科学基金 (批准号: 2025JC-YBMS-001) 和国家自然科学基金 (批准号: 11905119) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhuyuan@ust.edu.cn

性使其成为开发高可靠性忆阻器的极具潜力材料体系^[15]. 特别是氧化钨 (WO_x), 作为典型的过渡金属氧化物, 这种材料展现出氧离子和氧空位的卓越可调性. 其优异的电学特性, 包括高稳定性、2.7 eV 的适中带隙以及与 CMOS 制造工艺兼容^[16], 使其成为忆阻器应用的理想候选材料. 非晶金属氧化物因其无序的原子结构特征, 具有高密度氧空位, 这对 RS 特性起着决定性作用. 其中, 非晶三氧化钨 (a-WO_3) 作为忆阻器的活性介质已崭露头角^[17]. 然而, 要实现高模拟 RS 特性的 a-WO_3 忆阻器, 目前仍缺乏系统深入的研究.

众所周知, 非线性 WO_3 忆阻器的性能主要受氧空位浓度和导电细丝 (CFs) 结构的调控. 然而, 突然的 CF 形成/破裂会导致循环间差异、运行不稳定以及模拟开关性能下降^[18-21]. 因此, 要提升非线性 WO_3 忆阻器的模拟性能, 必须通过有效的手段抑制 CFs 的形成/破裂. 例如, 黄若朦等^[22]通过在 ZrO_2 中插入锆层制备了 ZrO_2 基忆阻器, 这使得 ZrO_2 内部形成了非化学计量的 ZrO_{2-x} 层. 这种结构改良实现了从界面切换模式到非界面切换模式的可控转换, 从而调控了模拟开关行为. Zou 等^[23]和 Yue 等^[24]制备了具有 V 型氧空位分布的忆阻器. 这种结构通过形成类似沙漏形状的 CF 路径, 实现了低功耗和高模拟性能. 然而, 基于氧空位浓度梯度分布的 a-WO_3 忆阻器在模拟开关行为方面的研究有限. 因此, 采用该策略实现优化模拟开关并深入地理解其底层机制, 对于潜在的神经形态计算应用具有重要意义.

本研究采用具有氧空位浓度梯度分布的非晶氧化钨薄膜作为介质层构建忆阻器. 实验中观察到模拟忆阻器展现出多级电导特性, 其构建的人工神经网络识别准确率高达 97.64%. 为阐明这些显著的模拟开关特性, 我们进一步提出了一种新型阻变机制与物理模型, 通过有效调控氧空位导电丝的形成与断裂过程来实现可控切换.

2 实验方案

器件制备含氧空位浓度梯度的五层 a-WO_3 忆阻器制备流程如下: 首先, 通过直流磁控溅射法在硅基底上沉积一层厚度约为 100 nm 的铂金属层作为下电极. 沉积前, 基底需用丙酮、乙醇和去离子水依次超声清洗 20 s. 随后采用射频磁控溅射技

术, 在铂/硅基底上沉积具有氧空位浓度梯度的五层 a-WO_3 薄膜. 为对比实验, 同时沉积单层 WO_3 薄膜以制备相同沉积时间的忆阻器. 溅射源采用纯度达 99.95% 的钨靶 (厚度 5 mm, 半径 30 mm).

对于具有氧空位浓度梯度的五层 a-WO_3 薄膜, 溅射功率固定为 100 W, 工作压力为 1.75 Pa, 溅射温度为 250 °C. 首先在铂/硅基底上沉积第一层薄膜, 气体流量 ($\text{Ar}:\text{O}_2$) 为 30:5 (气体流量的单位为 sccm), 沉积时间为 2 min. 随后将气体流量变为 30:10, 继续沉积 2 min, 第二层薄膜沉积完毕. 沉积第三层薄膜时气体流量为 30:15, 沉积时间为 2 min. 沉积第四层薄膜时气体流量变为 30:20, 沉积时间为 2 min. 最后, 沉积 2 min 的第五层薄膜, 气体流量为 30:25. 至此, 五层 a-WO_3 薄膜全部沉积完毕, 总沉积时间为 10 min. 单层氧化钨薄膜采用射频溅射法制备, 功率为 100 W, 工作压力 2.5 Pa, 溅射温度 250 °C. 溅射时间 10 min, 氩气流量为 30 mL/min (标准状况), 氧气流量为 10 mL/min (标准状况). 最后, 使用直径 300 μm 的掩模在 a-WO_3 薄膜上沉积钨顶电极以完成器件结构.

物理表征与电学测试采用扫描电子显微镜 (SEM, FEI Quanta 200 F) 对器件进行俯视图和横截面成像, 以验证 RS 层的形貌特征及厚度分布. 开关膜的晶体结构分析通过 X 射线衍射仪 (XRD, Bruker D8 Advanced) 完成. 此外, 利用 X 射线光电谱仪 (XPS, ESCALAB 250 Xi) 对 a-WO_3 薄膜中的原子浓度及氧空位形成情况进行定量表征. 开关电特性测试采用配备脉冲测量单元并连接探针台的半导体参数分析仪 (型号 2601 B) 进行. 测试包含直流和脉冲两种测量模式. 所有测量过程中, 均将偏置电压施加于顶部钨电极, 而底部铂电极则接地.

3 结果与讨论

3.1 梯形 V_{O} 分布 a-WO_3 忆阻器的设计与表征

图 1(a) 为五层 V_{O} 梯度分布忆阻器的制备流程图, 直观地展示了氧空位梯度分布制备过程. 如图 1(b) 所示, 该忆阻器采用垂直堆叠的五层 a-WO_3 结构, 具有梯度氧空位分布, 采用自上而下的 $\text{W}/\text{WO}_3/\text{Pt}$ 架构设计. 图 1(c) 展示了 a-WO_3 薄膜的

俯视扫描电镜图像, 表面光滑无针孔, 表明薄膜沉积质量优异^[25]. 通过截面扫描电镜分析 (图 1(d)) 测得五层 a-WO₃ 介质层厚度约为 343.2 nm. 为确定 a-WO₃ 薄膜的晶体结构特征, 采用氩气与氧气气体流量比为 30:5 的实验条件进行 XRD 分析 (图 1(e)). 未检测到对应 WO₃ 晶相的明显衍射峰, 证实沉积薄膜为非晶态^[26].

图 1(f) 展示了氩气与氧气的气体流量比为

30:5 条件下制备的 a-WO₃ 薄膜的 W 4f 区域高分辨率 XPS 谱. 谱图显示存在一个自旋轨道双重峰, 其结合能分别为 36.63 eV (W 4f_{7/2}) 和 38.78 eV (W 4f_{5/2}). 2.18 eV 的自旋轨道分裂能是 W⁶⁺氧化态的特征值, 与 Liu 等^[27] 报道的结果一致. 此外, 42.49 eV 处的峰归因于 W⁶⁺物种的 W 5p_{3/2} 发射^[28]. 图 1(g) 展示了在氩气与氧气的气体流量比为 30:5 条件下制备的 a-WO₃ 薄膜在 O 1s 区域的

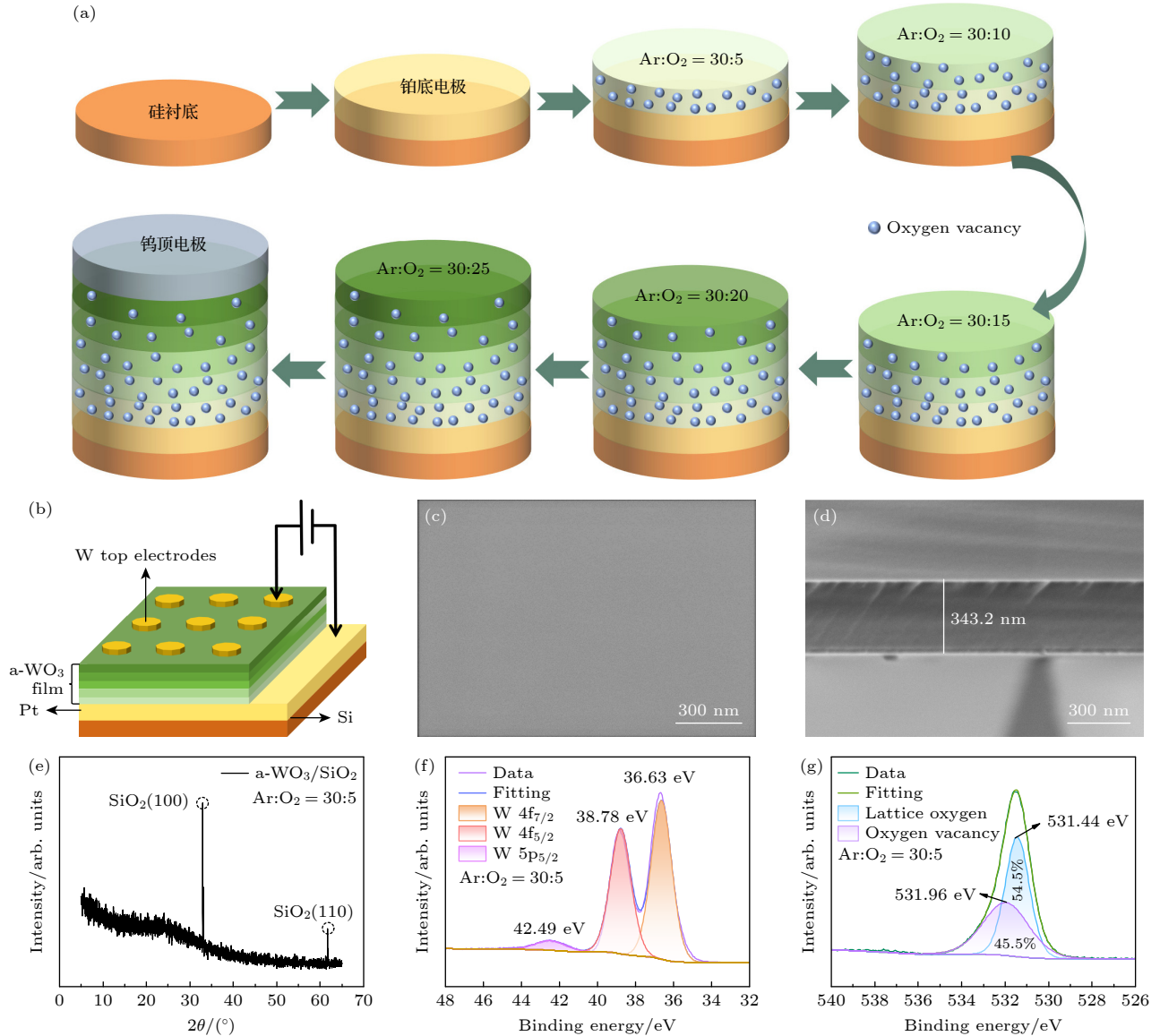


图 1 V_O 梯度分布的 a-WO₃ 忆阻器的制备流程、结构与表征 (a) 忆阻器的制备流程图; (b) 忆阻器器件结构示意图; (c) a-WO₃ 薄膜的 SEM 俯视图; (d) a-WO₃ 开关层的 SEM 横截面图; (e) 在 Ar:O₂ 为 30:5 时, 沉积在 Pt/SiO₂ 衬底上的 a-WO₃ 薄膜的 XRD 图谱; (f) Ar:O₂ 为 30:5 时合成的 a-WO₃ 膜的 W 4f 核心能级 XPS 光谱; (g) Ar:O₂ 为 30:5 时沉积的 a-WO₃ 膜的 O 1s 核心能级 XPS 光谱

Fig. 1. Preparation process, structure and characterization of a-WO₃ memristors with V_O trapezoidal distribution: (a) Flowchart of memristor fabrication process; (b) schematic of the memristor device structure; (c) top-view SEM image of the a-WO₃ thin film; (d) cross-sectional SEM image of the a-WO₃ switching layer; (e) typical XRD pattern of the a-WO₃ thin film deposited on a Pt/SiO₂ substrate at an Ar:O₂ gas flow ratio of 30:5; (f) W 4f core-level XPS spectrum of the a-WO₃ film synthesized at an Ar:O₂ gas flow ratio of 30:5; (g) O 1s core-level XPS spectra of a-WO₃ films deposited at an Ar:O₂ gas flow ratio of 30:5.

高分辨 XPS 光谱. 所有光谱均呈现出两个特征峰, 其中心波长均位于 530.81 eV 和 532.36 eV, 分别对应晶格氧和氧空位 [29].

如图 2(a)—(d) 所示, Ar:O₂ 为 30:10, 30:15, 30:20 和 30:25 条件下沉积的 a-WO₃ 薄膜也显示出相同的 W 4f 谱特征. 相同条件下沉积的 a-WO₃

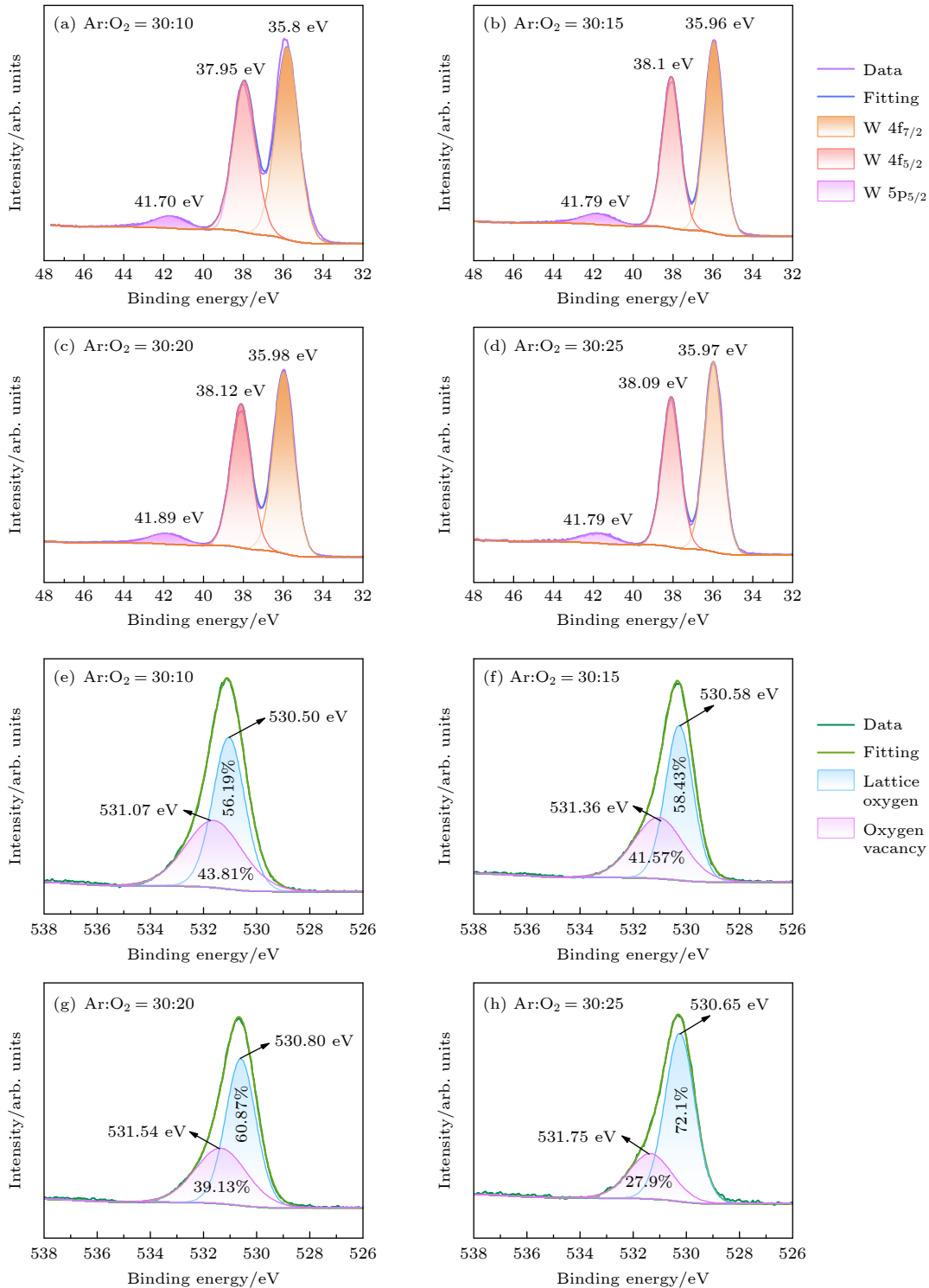


图 2 在 Ar:O₂ 为 (a) 30:10, (b) 30:15, (c) 30:20 和 (d) 30:25 时沉积的 a-WO₃ 膜的 W 4f 核心能级 XPS 谱; 在 Ar:O₂ 为 (e) 30:10, (f) 30:15, (g) 30:20 和 (h) 30:25 时沉积的 a-WO₃ 膜的 O 1s 核心能级 XPS 光谱

Fig. 2. W 4f core-level XPS spectrum of the a-WO₃ film synthesized at an Ar:O₂ gas flow ratio of (a) 30:10, (b) 30:15, (c) 30:20, and (d) 30:25; O 1s core-level XPS spectra of a-WO₃ films deposited at an Ar:O₂ gas flow ratio of (e) 30:10, (f) 30:15, (g) 30:20, and (h) 30:25.

薄膜在 O 1s 区域高分辨率 XPS 谱, 如图 2(e)—(h) 所示, 值得注意的是, 随着氧气流量的增加, 氧空位浓度系统性地降低, 这一现象也在表 1 中得到了量化. 这些结果证实了五层 a-WO₃ 忆阻器的介质层中存在梯度分布的氧空位, 有利于形成梯度分布的 CFs.

表 1 不同氩氧比下的氧空位浓度

Table 1. Oxygen vacancy concentration with different Ar:O₂ ratios.

Ar:O ₂	Oxygen vacancy/%	Lattice oxygen/%
30:5	45.5	54.5
30:10	43.81	56.19
30:15	41.57	58.43
30:20	39.13	60.87
30:25	27.9	72.1

3.2 V_O 梯度分布的电特性 a-WO₃ 忆阻器

图 3(a) 和图 3(g) 分别展示了单层与 V_O 梯度分布 a-WO₃ 忆阻器的连续 *I-V* 曲线. 如图 3(a) 所示, 为防止器件完全被击穿, 单层 a-WO₃ 忆阻器施加了 30 mA 的限流电流. 置位过程发生在正向电压扫描期间, 其特征是电流突然增大, 使器件从低阻态 (LRS) 切换至高阻态 (HRS). 相反, 复位过程则在负向电压扫描期间发生, 其特征是电流骤降, 使器件重新回到高阻态. 相比之下, V_O 梯度分布 a-WO₃ 忆阻器在 50 mA 限流电流下, 其置位和复位过程均呈现渐进式电流变化, 这表现出模拟电阻开关特性. 图 3(b) 和图 3(h) 分别展示了单层与 V_O 梯度分布 a-WO₃ 忆阻器在 0.05 V 读取电压下 10⁴ s 内的 HRS 和 LRS 状态保持特性. 值得注意的是, 两种器件在 HRS 和 LRS 状态下的波动幅度均显著降低. 如图 3(c) 所示, 单层 a-WO₃ 忆阻器在 10⁴ s 内表现出不稳定的保持特性: LRS 在前 600 s 内出现明显波动后趋于稳定, 而 HRS 在约 7500 s 后性能显著下降. 然而, 如图 3(i) 所示, 在 V_O 梯度分布的 a-WO₃ 忆阻器中, HRS 和 LRS 状态在 10⁴ s 内未出现性能衰减, 表明其具有优异的非易失性. 在整个连续测量过程中, 保持了约一个数量级的稳定电阻窗口.

此外, 我们采用 ±1.5 V/20 ms 的脉冲、0.05 V 读取电压进行交流脉冲耐久性测试. 如图 3(d) 和图 3(j) 所示, 单层与 V_O 梯度分布 a-WO₃ 忆阻器

均展现出优异的稳定性. 在写入/擦除脉冲过程中, 低阻态 (LRS) 和高阻态 (HRS) 能成功切换至相反状态, 证明其循环稳定性优异. 为评估开关行为的运行一致性, 我们分别对单层与 V_O 梯度分布 a-WO₃ 忆阻器的设定电压 (V_{SET}) 和复位电压 (V_{RESET}) 进行了统计分析, 结果如图 3(e), (f) 及图 3(k), (l) 所示.

值得注意的是, 在 Set 过程中, 单层 WO₃ 忆阻器形成较窄的锥形 CFs, 所需 Set 电压低且分布集中, 平均 V_{SET} 值为 0.779 V, 标准差为 0.074 V. V_O 梯度分布的 a-WO₃ 忆阻器, 氧空位生长形成较宽的非锥形 CFs, 多层结构因缺陷和界面更多, 生长更复杂, 因此所需 Set 电压更高且电压分布更广, 平均 V_{SET} 值为 0.827 V, 标准差分别为 0.091 V. 在 Reset 过程中, 单层 WO₃ 忆阻器 CFs 断裂随机、可控性差, 阻态突变, 所需 Reset 电压低且分布广, 平均 V_{RESET} 值为 -1.076 V, 标准差为 0.087 V. V_O 梯度分布的 a-WO₃ 忆阻器, 非锥形 CFs 难以瞬间完全断裂, CFs 断裂时可控性好, 可以实现同步破裂, 使得阻态能够逐渐改变, 因此需要更高 Reset 电压, 电压分布更集中, 平均 V_{RESET} 值为 -1.545 V, 标准差为 0.080 V.

图 4 展示了具有 V_O 梯度分布的 a-WO₃ 忆阻器模拟 RS 特性. 图 4(a) 呈现了 100 条连续 *I-V* 曲线, 测量时未加限制电流, 正向截止电压为 1.8 V, 反向截止电压为 -1.7 V. 这种稳定的 RS 特性表明, 具有 V_O 梯度分布的 a-WO₃ 忆阻器具备固有的电流自限性, 该特性可防止器件因过流受损, 确保电路稳定运行. 图 4(b) 和图 4(c) 展示了 V_O 梯度分布 a-WO₃ 忆阻器在 ±1.5 V/2 ms 脉冲测试模式下 (恒定读取电压 0.05 V) 的设置与复位响应速度特性. 显然, 设置和复位响应时间分别测量为 80 μs 和 70 μs.

为深入地表征 V_O 梯度分布 a-WO₃ 忆阻器的模拟开关特性, 通过直流扫描技术对其进行了多级测量. 图 4(d) 展示了该忆阻器的多级存储能力, 通过在设置过程中调节限流电流 (10, 50, 30, 40 和 50 mA) 实现. 显然, 模拟行为呈现出明显的电阻状态特征, 这表明 V_O 梯度分布 a-WO₃ 忆阻器的多级存储特性可通过调控限制电流实现. 图 4(e) 则展示了连续负偏置和正偏置扫描的直流特性曲线, 其电压范围分别为 -1.3 至 -1.7 V 和 0.7—1.3 V.

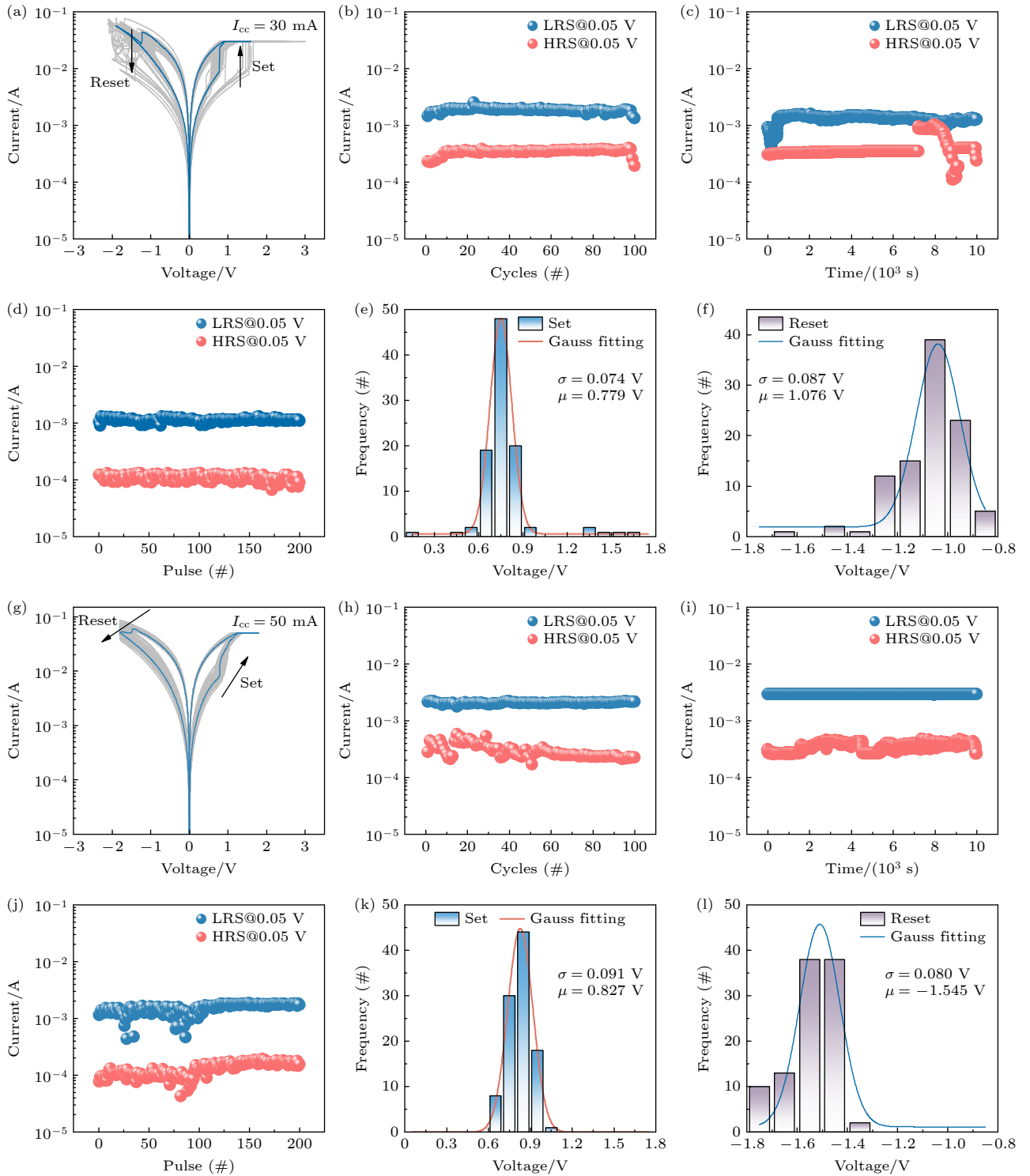


图3 单层 $a\text{-WO}_3$ 忆阻器的 RS 特性 (a) 具有代表性的连续 I - V 曲线; (b) 读数电压为 0.05 V 时的耐久性性能; (c) HRS 和 LRS 态在 0.05 V 读电压下 10^4 s 的保持特性; (d) 连续周期的脉冲循环; (e) V_{SET} 的统计分布; (f) V_{RESET} 的统计分布. V_{O} 分布梯度 $a\text{-WO}_3$ 忆阻器的 RS 特性; (g) 具有代表性的连续 I - V 曲线; (h) 读数电压为 0.05 V 时的续航性能; (i) HRS 和 LRS 状态在 0.05 V 读电压下 10^4 s 的保持特性; (j) 连续周期的脉冲循环; (k) V_{SET} 的统计分布; (l) V_{RESET} 的统计分布

Fig. 3. RS characteristics of the single-layer $a\text{-WO}_3$ memristor: (a) Representative consecutive I - V curves; (b) endurance performance measured at a reading voltage of 0.05 V; (c) retention characteristic of HRS and LRS states for 10^4 s at a read voltage of 0.05 V; (d) pulse endurance testing; (e) statistical distribution of V_{SET} ; (f) statistical distribution of V_{RESET} . RS characteristics of $a\text{-WO}_3$ memristor with V_{O} distribution gradient; (g) representative consecutive I - V curves; (h) endurance performance measured at a reading voltage of 0.05 V; (i) retention characteristic of HRS and LRS states for 10^4 s at a read voltage of 0.05 V; (j) pulse endurance testing; (k) statistical distribution of V_{SET} ; (l) statistical distribution of V_{RESET} .

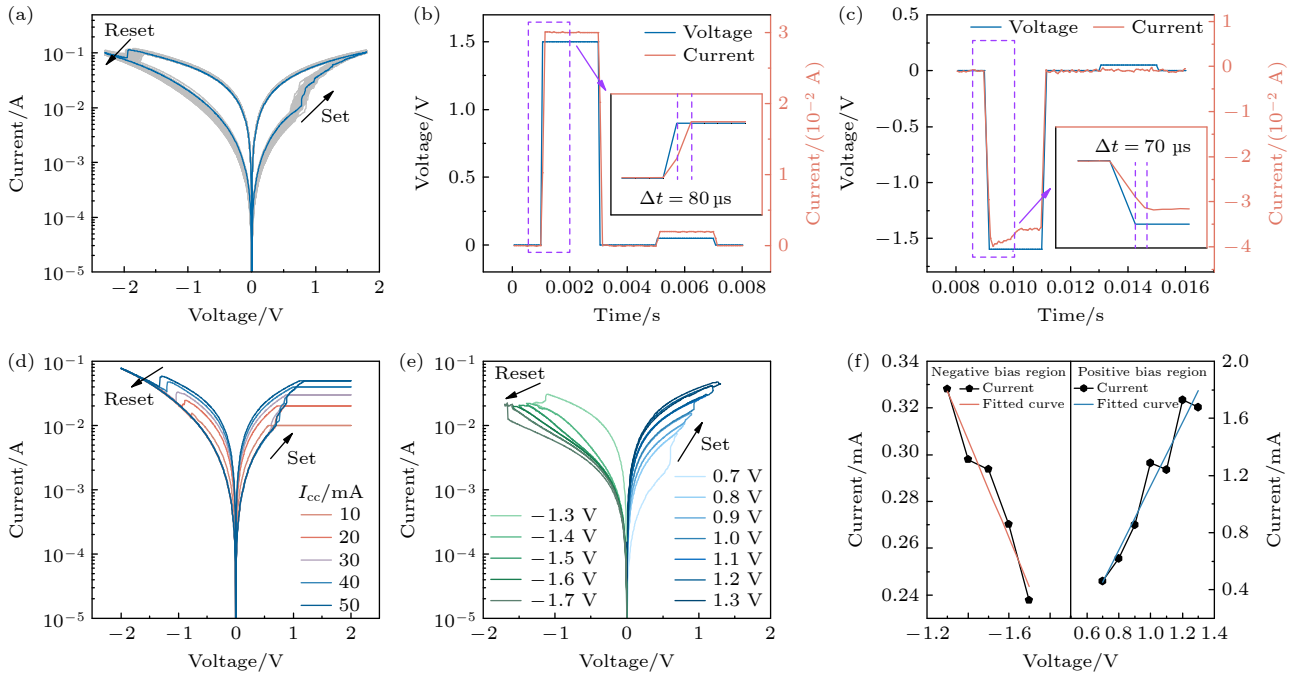


图4 V_O 梯度分布 a- WO_3 忆阻器模拟 RS 特性 (a) 无限制电流条件下的典型 I - V 曲线; (b) 脉冲操作下测得的设置响应速度; (c) 脉冲操作下测得的复位响应速度; (d) 10, 50, 30, 40 及 50 mA 不同限制电流下的 RS 特性; (e) 不同复位电压下的电阻调谐效果; (f) 不同截止电压下的电导增强与衰减过程

Fig. 4. Analog RS characteristics in a- WO_3 memristors with gradient V_O distribution: (a) Typical I - V curves without limiting currents; (b) set process response speed measured under pulsed operation; (c) reset process response speed measured under pulsed operation; (d) RS behavior under various limiting currents of 10, 50, 30, 40, and 50 mA; (e) resistive tuning using different reset and set voltages; (f) successive conductance enhancement and weakening at different stop voltages.

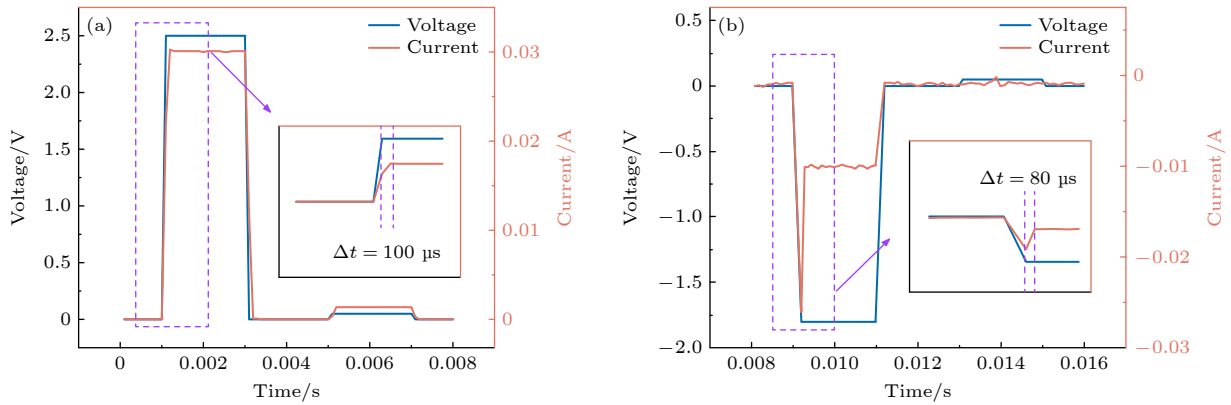


图5 单层 a- WO_3 忆阻器的响应速度 (a) 脉冲操作下测量的设置过程响应速度; (b) 脉冲操作下测量的复位过程响应速度

Fig. 5. Response speed of the single-layer a- WO_3 memristor: (a) Set process response speed measured under pulsed operation; (b) reset process response speed measured under pulsed operation.

值得注意的是, 该器件同时表现出渐进式设置和复位过程, 分别伴随电导增强与抑制现象. 这些行为特征与突触增强和抑制机制相似. 如图 4(f) 所示, 在负偏置区域的 5 个电阻状态下, 器件呈现电流持续下降趋势; 而在正偏置区域的 7 个电阻状态下则表现为电流逐步上升. 这种双向调节特性与突触弱化和强化过程相对应. 实验结果表明, V_O 梯度分布 a- WO_3 忆阻器能够在可调且渐进 (模拟) 的

电导范围内实现多阻态性. 如图 5(a) 和图 5(b) 所示, 采用相同的脉冲方案, 单层 a- WO_3 忆阻器的设置和复位响应时间分别测量为 100 μ s 和 80 μ s. 明显观察到 V_O 梯度分布 a- WO_3 忆阻器的响应时间显著优于单层结构的 WO_3 忆阻器, 突显了其在神经形态计算应用中的潜力.

为探究 V_O 梯度分布非线性忆阻器的 RS 机制及其对应的开关模型, 我们对导电过程进行了详细

分析,如图6所示.图6(a)展示了正电压扫描过程中双对数坐标系下的 $I-V$ 曲线拟合结果:低阻态(LRS)下电流呈现线性电压关系,而高阻态(HRS)可分为I,II,III三个区域,并对每个区域进行拟合.图6(b)显示I区域存在线性 $I-V$ 关系,为低电场初始阶段,此时电压较低, WO_3 薄膜内部缺陷尚未被大量填充,电极注入的电子数量较少.器件由 a-WO_3 介质层中热生成的本征载流子导电,薄膜内自由电子浓度低,电导率较低,阻值较大,所以主导机制为欧姆传导[30,31].

如图6(c)所示,在HRS的II区域,是低电场缺陷填充阶段.随着电压继续增大,电极注入的电子数量增多,薄膜内部缺陷被逐渐填充.相较于I区域,II区域内的自由电子浓度显著地提升,电导率随之增加,器件阻值减小.此时仍处于低电场范畴,电流与电压呈现典型的平方关系.如图6(d)所示,为HRS的III区域,高电场导电细丝形成阶段,当电压进入高电场区间,顶电极向薄膜内注入的自由电子数急剧增多,薄膜内的缺陷被完全填充,缺陷对电子迁移的阻碍作用消失.此时,氧空

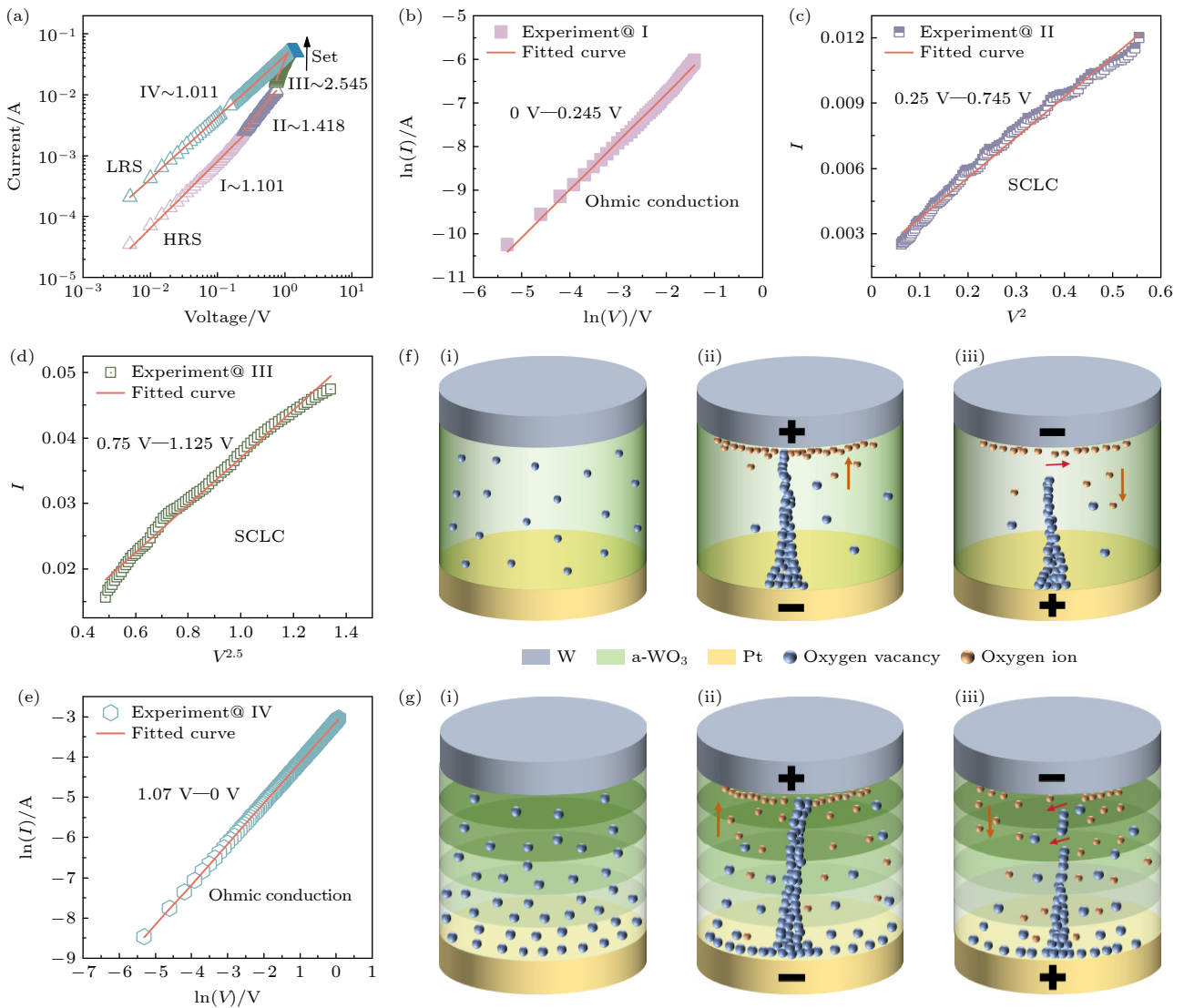


图6 a-WO_3 忆阻器中电流传导机制及RS行为的分析与示意图模型 (a) $I-V$ 曲线正偏置区的对数坐标图及拟合结果; (b) HRS 低压区的欧姆传导拟合; (c) HRS 高压区 $I-V^2$ 的关系; (d) HRS 高压区 $I-V^{2.5}$ 的关系; (e) LRS 的欧姆传导拟合; (f) 单层 a-WO_3 忆阻器中RS行为的示意图模型; (g) 梯形 V_O 分布的 a-WO_3 忆阻器RS模型示意图

Fig. 6. Analysis of current conduction mechanisms and schematic models of the RS behavior in a-WO_3 memristors: (a) Logarithmic plots and fitting results for the positive bias region of the $I-V$ curves; (b) Ohmic conduction fitting in the low-voltage region of the HRS; (c) relationship between $I-V^2$ in the high-voltage region of the HRS; (d) relationship between $I-V^{2.5}$ in the high-voltage region of the HRS; (e) Ohmic conduction fitting for the LRS; (f) schematic model of RS in a single-layer a-WO_3 memristor; (g) schematic diagram of the RS model for an a-WO_3 memristor with a trapezoidal V_O distribution.

位形成的导电细丝将顶电极与底电极直接连通, 器件电流激增, 电流对 $V^{2.5}$ 呈现线性关系, 阻态从 HRS 转变为 LRS. 器件在 HRS 下经历上述三个电压阶段, 符合空间电荷限制电流 (SCLC) 理论, 即电流源自过量注入的载流子而非热生成的本征载流子^[32-34]. 如图 6(e) 所示, 采用对数线性关系 ($\ln V - \ln I$) 对 LRS 的 $I-V$ 曲线进行了重新拟合. 其显著的线性特征表明器件具有金属导电特性, 证实欧姆传导机制在 LRS 中起主导作用. 这一现象验证了 CFs 在 $\alpha\text{-WO}_3$ 忆阻器中能有效实现两电极间的导电连接^[35].

基于对 RS 特性和传输机制的分析, 针对单层和 V_{O} 梯度分布的 $\alpha\text{-WO}_3$ 忆阻器提出了 CFs 模型, 分别如图 6(f) 和图 6(g) 所示. 图 6(f) 详细地展示了单层 WO_3 忆阻器的 RS 模型, 包含初始态、低阻态 (LRS) 和高阻态 (HRS). $\alpha\text{-WO}_3$ 忆阻器的 RS 行为主要归因于以氧空位为主的 CFs 形成与破裂过程. 在初始态时, $\alpha\text{-WO}_3$ 介质层中存在因薄膜生长过程中无序性产生的本征氧空位, 这些氧空位浓度较低, 且随机分布在介质层中, 此时器件整体导电能力弱, 处于高阻态^[36]. 当顶部电极施加正电压时, 氧离子在电场力作用下获得足够迁移能, 克服势垒向顶电极 (阳极) 方向定向迁移. 氧离子迁移后产生的氧空位聚集在电极间形成 CFs, 导致器件在设置过程中从高阻态转变为低阻态. 反之, 当施加反向偏压时, 电场方向反转, 驱动顶电极附近的氧离子向介质层内部回迁, 与之前形成的氧空位发生复合反应, 这种复合过程会在复位阶段破坏化学键合结构, 随着氧空位被不断填充, 原本连续的 CFs 出现断裂, 导电通道的有效截面积减小, 电子传输受阻, 使单层 WO_3 忆阻器重新切换回高阻态.

图 6(g) 展示了 V_{O} 梯度分布的 $\alpha\text{-WO}_3$ 阻变模型示意图. 初始状态下, 通过控制溅射过程中氧含量的浓度, 在介质层形成了 V_{O} 梯度分布. XPS 分析证实 V_{O} 浓度自上而下逐渐升高, 与溅射过程中氧含量浓度自上而下逐渐降低相反, 与我们的预期结果是相契合的. 值得注意的是, 在各介质层中, V_{O} 分布均呈现横向均匀性, 使得材料整体性能稳定. 当施加正电压时, 氧离子向顶部电极迁移, 导致底部电极处首先出现氧空位聚集并形成 CFs. 具体而言, 由于底部区域 V_{O} 浓度较高, 正电荷相对较多, 而顶部区域 V_{O} 浓度较低, 正电荷相对较少, 因此会形成一个从底部指向顶部的电场, 且电场强

度随着 V_{O} 浓度梯度的增大而增强. 氧离子在迁移过程中受到的电场力不断变化, 靠近底部电极处, 电场强度相对较小, 氧离子迁移速度较慢, 氧空位的聚集相对较为缓慢. 随着氧离子向顶部电极迁移, 氧离子附近的电场强度逐渐增大, 使得氧离子迁移速度加快. 同时由于电场力的变化, 氧空位不再集中在某一特定方向聚集, 而是在较大的范围内较为均匀地生长. 使得形成的 CFs 不再局限于从底部到顶部逐渐变细的锥形结构, 而是呈现出相对均匀的非锥形结构特征. 当施加负电压时, 材料内部的电场方向发生反转, 氧离子向底部电极迁移, 最终形成的非锥形 CFs 可以实现同步破裂, 同时, 有助于在阻变过程中逐渐改变阻态, 使得阻态的改变更加平滑和稳定^[37-39].

3.3 人工突触行为与神经形态计算演示生物

突触中突触前神经元与突触后神经元之间的神经信号传递, 类似于忆阻器电极间的电子流动. 图 7(a) 展示了模拟生物突触的 V_{O} 梯度分布特性, 其中顶部钨电极和底部铂电极分别代表突触前神经元的轴突末端与突触后神经元的树突. 忆阻器的导电性对应神经元间的突触权重, 而突触可塑性则实现了对这种权重的调控^[40]. 因此, 我们研发的高性能模拟忆阻器能够有效地模拟关键的突触特征.

图 7(b)–(e) 展示了 V_{O} 梯度分布 $\alpha\text{-WO}_3$ 忆阻器在人工突触应用中电脉冲刺激下的长时程增强 (LTP) 和长时程抑制 (LTD) 曲线, 揭示了突触权重更新的梯形特征. 图 7(b) 描绘了连续正方波电压脉冲 (1 V, 50 ms) 引发的兴奋性突触后电流响应, 电流增强现象对应生物系统中突触连接的强化过程. 与之相反, 图 5(c) 展示了间隔 20 ms 的连续负方波电压脉冲 (-1 V, 50 ms) 诱发的抑制行为, 这类似于突触连接的弱化过程. 图 7(d) 展示了器件通过连续 LTP 和 LTD 实现 20 个电阻状态线性调控的特性, 可以明显地看出, 通过施加连续正负电位脉冲可有效调节对应增强和抑制的电导状态. 为描述电导调制过程的线性特征, 将 LTP 和 LTD 电导变化建立为脉冲次数的函数^[41,42]. 如图 7(e) 所示, 拟合得到 LTP 的非线性因子为 0.056, LTD 的非线性因子为 0.051. 具体计算公式如下:

$$G_{n+1} = G_n + \Delta G_p = G_n + \alpha_p e^{-NL_{LTP} \frac{G_n - G_{\min}}{G_{\max} - G_{\min}}}, \quad (1)$$

$$G_{n+1} = G_n + \Delta G_d = G_n + \alpha_d e^{-NL_{LTD} \frac{G_{\max} - G_n}{G_{\max} - G_{\min}}}, \quad (2)$$

式中, G_n 表示第 n 次测试的电导, G_{n+1} 表示第 $n+1$ 次测试的电导. ΔG_p 为第 n 次和第 $n+1$ 次电导的变化量, 长时程抑制 (LTD) 引起的权重增量. ΔG_d 为第 n 次和第 $n+1$ 次电导的变化量, 长时程抑制 (LTD) 引起的权重减量. α_p 和 α_d 为与 LTP 和 LTD 相关的系数. NL_{LTP} 为 LTP 过程的非线性

性因子, NL_{LTD} 为 LTD 过程的非线性因子. G_{\max} 和 G_{\min} 指最大电导和最小电导. 总体而言, 这些结果表明 a-WO₃ 忆阻器中 V_O 梯度分布展现的渐进电导行为具有可控性, 尤其适用于模拟突触过程.

接下来, 我们为美国国家标准与技术研究院 (MNIST) 手写数字识别任务构建了忆阻神经网络模型, 验证 V_O 梯度分布 a-WO₃ 忆阻器在神经形态计算应用中的可行性 [43]. 通过深度神经网络研究突触器件特性, 将 MNIST 数据库中修改后的数

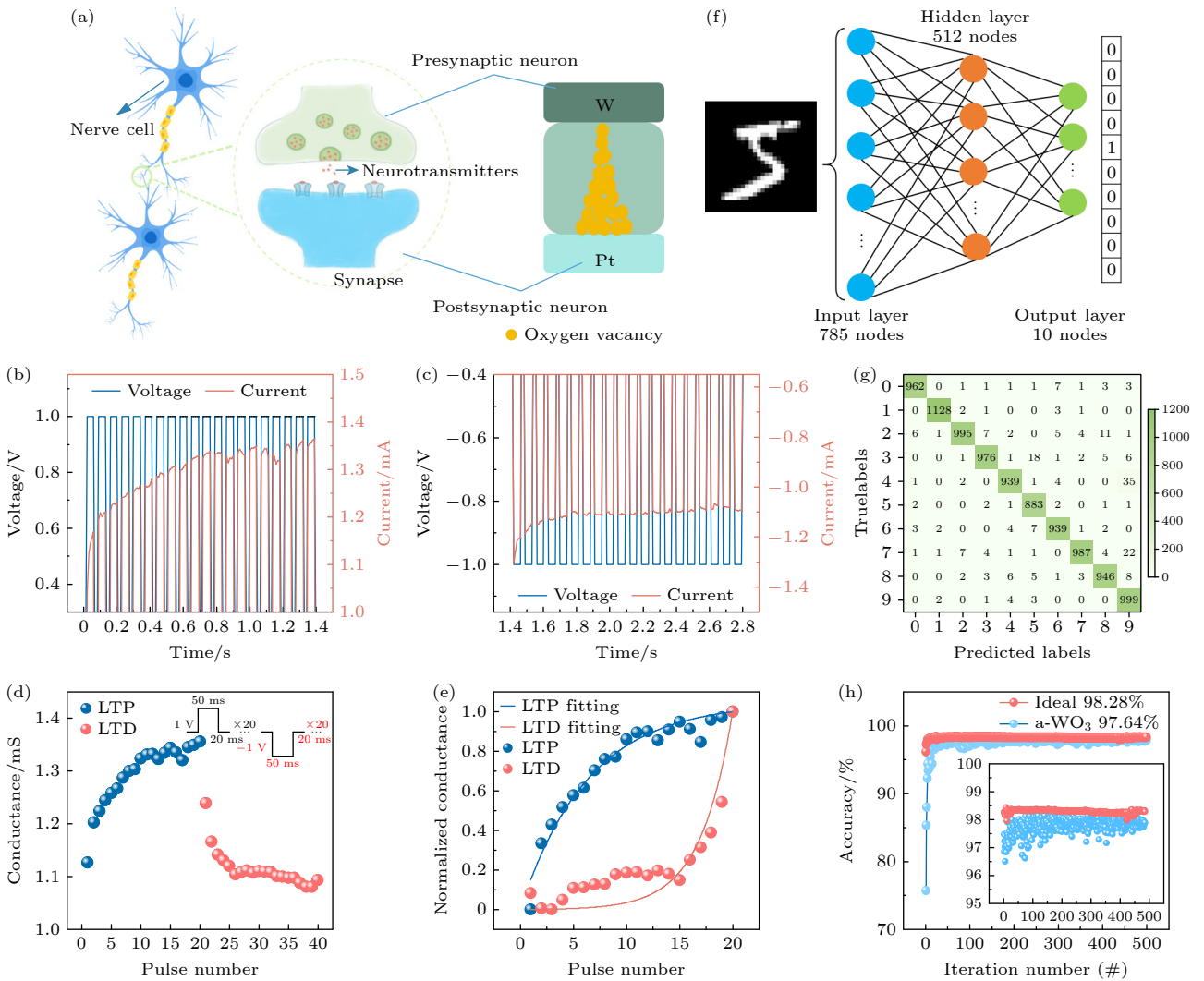


图 7 人工突触行为与神经形态计算模拟 (a) 模拟生物突触连接的 a-WO₃ 忆阻器电子突触结构示意图; (b) 正方波脉冲电压序列导致的突触增强效应; (c) 负方波脉冲电压序列导致的突触抑制效应; (d) 忆阻器在连续电压脉冲作用下的渐进性电导调制过程; (e) 突触权重更新非线性函数的拟合结果; (f) MNIST 数字模式识别测试的神经网络架构设计; (g) 测试集分类结果的混淆矩阵; (h) 训练次数与理想模型对比的识别准确率曲线

Fig. 7. Artificial synapse behaviors and neuromorphic computing simulation: (a) Schematic of the a-WO₃ memristor electronic synapse emulating a biological synaptic connection; (b) synaptic potentiation under a sequence of positive square pulsed voltage stresses; (c) synaptic depression under a sequence of negative square pulsed voltage stresses; (d) gradual conductance modulation of the memristor under sequential voltage pulses; (e) the fitting results for synaptic weight update nonlinearity; (f) neural network architecture for MNIST digit pattern recognition testing; (g) confusion matrix illustrating classification results on the test set; (h) evolution of recognition accuracy with training epochs in comparison to the ideal case.

字“5”裁剪为 58×58 像素格式进行计算, 如图 7(f) 所示. 该三层感知器神经网络架构包含输入层 785 个神经元、隐藏层 515 个神经元和输出层 10 个神经元. 采用混淆矩阵评估分类模型性能, 通过将预测结果与真实标签进行比对, MNIST 数据集包含 10 个数字 (0—9), 形成 10×10 混淆矩阵. 该矩阵将真实标签 (每张图像中的实际数字) 与模型预测标签进行对比. 如图 7(g) 所示, 混淆矩阵结果证实了 V_O 梯度分布 $a\text{-WO}_3$ 忆阻器的性能优势^[44]. 图 7(h) 展示了 MNIST 手写数字识别的神经网络训练效果: 经过 500 个训练周期后, 模型准确率达到 97.64%, 略低于纯软件仿真基准值^[45]. 这一优异表现源于 $a\text{-WO}_3$ 忆阻器通过 V_O 梯度分布策略实现的卓越模拟特性.

4 结 论

本文制备了单层和五层 V_O 梯度分布的 $W/\text{WO}_3/\text{Pt}$ 忆阻器, 对两组器件进行系统的电学性能测试与表征分析. 研究发现, 在 $a\text{-WO}_3$ 介质层中, V_O 梯度分布会形成自下而上逐渐增强的电场, 从而使所形成的导电细丝 (CFs) 形态相对均匀, 而非传统结构中常见的锥形. 当施加负电压时, 氧离子向底部电极迁移, 使形成的非锥形导电细丝能够在电场作用下实现同步断裂, 从而在阻变切换过程中实现阻态的渐进式调控. 本文展示了基于 V_O 梯度分布的非易失性 $a\text{-WO}_3$ 忆阻器在高性能模拟电阻开关的突破. 采用 V_O 梯度分布的器件展现出卓越的可靠性: 低周期波动性、线性增强/抑制过程优异、数据保持时间超过 10^4 s, 并具有自限流特性. 通过 MNIST 数字模式识别测试, 基于 V_O 梯度分布 $a\text{-WO}_3$ 忆阻器的人工神经网络实现了超过 97% 的识别准确率. 该 V_O 梯度分布策略可推广至其他氧化物阻变材料, 为高性能神经计算系统提供模拟型忆阻器解决方案.

参考文献

- [1] Pan J Y, Kan H, Liu Z R, Gao S, Wu E X, Li Y, Zhang C W 2024 *npj Flexible Electron.* **8** 70
- [2] Yan X B, Bai J H, Zhang Y X, Wang H, Zhao J H, Zhou Z Y, Sun Y, Wang Z R, Guo Z Q, Zhao Z, Niu J Z 2024 *Mater. Today Nano* **25** 100458
- [3] Feng C Y, Wu W W, Liu H D, Wang J K, Wan H Z, Ma G K, Wang H 2023 *Nanomaterials* **13** 2720
- [4] Jang B, Kim J, Lee J, Jang J, Kwon H J 2024 *J. Mater. Sci.*

- Technol.* **189** 68
- [5] Ren J W, Shen H Z, Liu Z Y, Xu M, Li D H 2022 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **14** 21141
- [6] Park S O, Jeong H, Park J, Bae J, Choi S 2022 *Nat. Commun.* **13** 2888
- [7] Wang Y, Chen S D, Cheng X H, Chen W, Xiong Z Y, Lv Z Y, Wu C Y, Wang L, Zhang G H, Zhu X B, Luo L B, Han S T 2024 *Adv. Funct. Mater.* **34** 2309807
- [8] Abbas H, Li J Y, Ali A, Hussain S, Jung J W, Ang D S 2025 *J. Mater. Sci. Technol.* **216** 99
- [9] Gong Y C, Ming J Y, Wu S Q, Yi M D, Xie L H, Huang W, Ling H F 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 207302 (in Chinese) [贡以纯, 明建宇, 吴思齐, 仪明东, 解令海, 黄维, 凌海峰 2024 物理学报 **73** 207302]
- [10] Panda D, Hui Y F, Tseng T Y 2024 *Nanoscale* **16** 16148
- [11] Ju D, Kim S 2024 *Adv. Funct. Mater.* **34** 2409436
- [12] Ganaie M M, Kumar A, Shringi A K, Sahu S, Saliba M, Kumar M 2024 *Adv. Funct. Mater.* **34** 2405080
- [13] Elshekh H, Wang H Y, Yang C, Zhu S H 2024 *J. Appl. Phys.* **135** 135107
- [14] Hsu C C, Chuang H, Jhang W C 2021 *J. Alloys Compd.* **882** 160758
- [15] Mahata C, Pyo J, Jeon B, Ismail M, Moon J, Kim S 2023 *Adv. Compos. Hybrid Mater.* **6** 144
- [16] Zhang K J, Ren K, Qin X Z, Zhu S H, Yang F, Zhao Y, Zhang Y 2021 *IEEE Trans. Electron Devices* **68** 3807
- [17] Li C, Hsieh J, Hung M T, Huang B 2015 *Vacuum* **118** 125
- [18] Li Z N, Tian B Y, Xue K H, Wang B, Xu M, Lu H, Sun H J, Miao X S 2019 *IEEE Trans. Electron Devices* **40** 1068
- [19] Dai X H, Hua Q L, Jiang C S, Long Y, Dong Z L, Shi Y H, Huang T C, Li H T, Meng H X, Yang Y, Wei R L, Shen G Z, Hu W G 2024 *Nano Energy* **124** 109473
- [20] Rudrapal K, Bhattacharya G, Adyam V, Chaudhuri A R 2022 *Adv. Electron. Mater.* **8** 2200250
- [21] Cho Y, Kim J, Kang M, Kim S 2023 *Materials* **16** 1687
- [22] Huang R M, Yan X Z, Ye S, Kashtiban R, Beanland R, Morgan K A, Charlton M D, Groot C D 2017 *Nanoscale Res. Lett.* **12** 384
- [23] Zou L Q, Peng Z R, Sun H J, Yi Y H, Zhu C Q, Xu J Y, Zhang J M, Hu X B, Dang Y P, Ye L, Miao X S 2024 *Adv. Funct. Mater.* **35** 2416325
- [24] Yue J L, Zou L Q, Bai N, Zhu C Q, Yi Y H, Xue F, Sun H J, Hu S, Cheng W M, He Q, Lu H, Ye L, Miao X S 2024 *Small Methods* **8** 2301657
- [25] Huang W Y, Nie L H, Lai X C, Fang J L, Chen Z L, Chen J Y, Jiang Y P, Tang X G 2024 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **16** 23615
- [26] Qu Z Z, Zhang B L, Li C F, Peng Y T, Wang L P, Li Q X, Zeng Z H, Dong J H 2021 *Electrochim. Acta* **377** 138123
- [27] Liu Y H, Wang C X, Li Z Y, Wang Y S, Lu W Q, Huang H L 2021 *Physica E* **127** 114515
- [28] Rajkumari R, Alam M W, Souayah B, Singh N K 2024 *J. Mater. Sci.* **59** 3270
- [29] Zhang L, Tang Z H, Yao D J, Fan Z Y, Hu S C, Sun Q J, Tang X G, Jiang Y P, Guo X B, Huang M Q, Zhong G K, Gao J 2022 *Mater. Today Phys.* **23** 100650
- [30] Guo D, Wu Z, An Y, Li P, Wang P, Chu X, Guo X, Zhi Y, Lei M, Li L 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 042105
- [31] Kumari A, Shanbogh S M, Udachyan I, Kandaiah S, Roy A, Varade V, A. Ponnamm 2020 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12** 56568
- [32] Chabungbam A S, Kim M, Thakre A, Kim D E, Park H H 2025 *J. Mater. Sci. Technol.* **213** 125

- [33] He X L, Chen P 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 028501 (in Chinese) [何小龙, 陈鹏 2025 物理学报 **74** 028501]
- [34] Chen T, Zhang T, Yin Y X, Xie Y S, Qiu X Y 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 148401 (in Chinese) [陈涛, 张涛, 殷元祥, 谢雨莎, 邱晓燕 2023 物理学报 **72** 148401]
- [35] Ilyas N, Wang J Y, Li C M, Fu H, Li D Y, Jiang X D, Gu D, Jiang Y D, Li W 2022 *J. Mater. Sci. Technol.* **97** 254
- [36] Wang Y C, Yan Y, Wang C, Chen Y T, Li J Y, Zhao J S, Hwang C S 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 072902
- [37] Chauhan M, Choudhary S, Sharma S K 2024 *Adv. Electron. Mater.* **10** 2300724
- [38] Kim D, Shin J, Kim S 2022 *Appl. Surf. Sci.* **599** 153876
- [39] Wang Y, Huang H X, Huang X L, Guo T T 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 197201 (in Chinese) [王英, 黄慧香, 黄香林, 郭婷婷 2023 物理学报 **72** 197201]
- [40] Liu Y, Zhou X F, Yan H, Shi X, Chen K, Zhou J Y, Meng J L, Wang T Y, Ai Y L, Wu J X 2023 *Adv. Mater.* **35** 2301321
- [41] Yang W H, Kan H, Shen G Z, Li Y 2024 *Adv. Funct. Mater.* **34** 2312885
- [42] Kundale S S, Pawar P S, Kumbhar D D, Devara I K G, Sharma I, Patil P R, Lestari W A, Shim S, Park J, Dongale T D 2024 *Adv. Sci.* **11** 2405251
- [43] Xiong X Y, Wu F, Yang Y O, Liu Y M, Wang Z G, Tian H, Dong M D 2024 *Adv. Funct. Mater.* **34** 2213348
- [44] Huang J H, Yang S D, Tang X, Yang L L, Chen W J, Chen Z B, Li X M, Zeng Z P, Tang Z K, Gui X C 2023 *Adv. Mater.* **35** 2303737
- [45] Zhang G B, Wang Z J, Fan X M, Wang Z, Li P T, Luo Q, Gao D W, Wan Q, Zhang Y S 2024 *Appl. Phys. Lett.* **125** 133501

Application of amorphous-WO₃ simulated memristors with oxygen vacancy concentration gradients in neuromorphic computing*

WANG Hongjun ZHANG Miao ZHANG Yunfei WANG Xin
ZHOU Jing ZHU Yuanyuan[†]

(School of Physics and Information Science, Shaanxi University of Science and Technology, Xi'an 710021, China)

(Received 30 September 2025; revised manuscript received 30 October 2025)

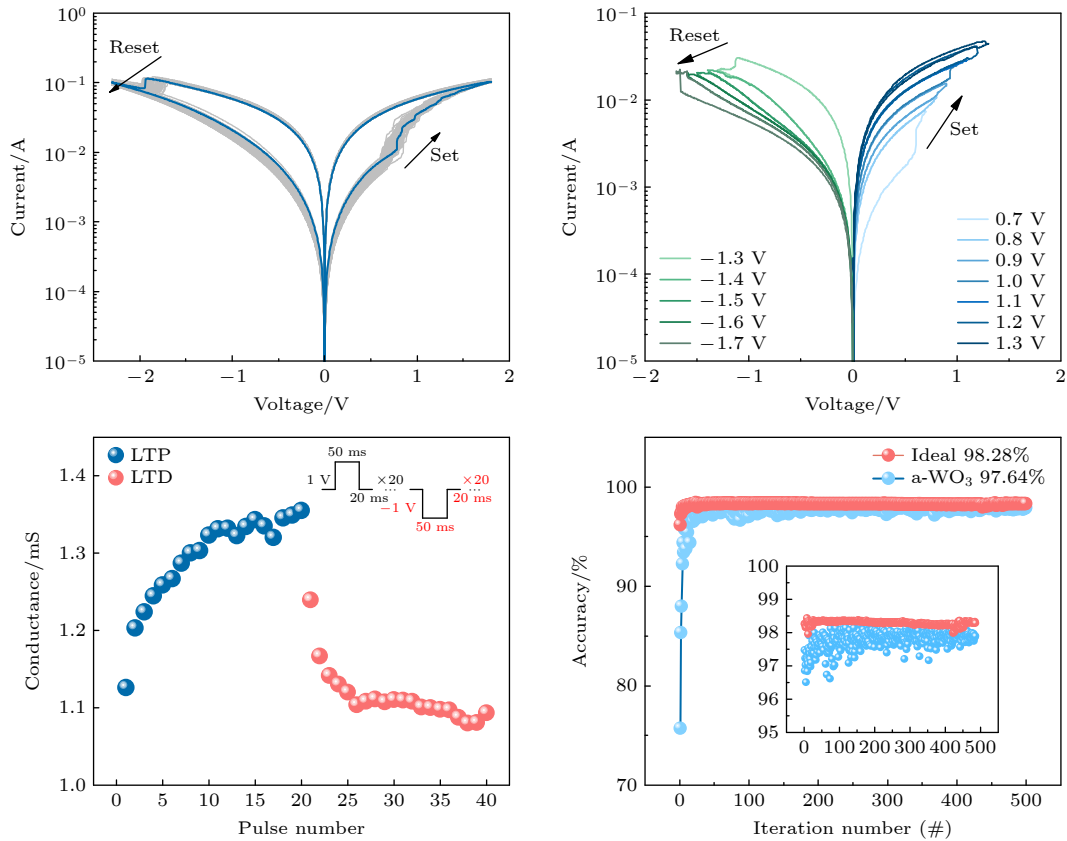
Abstract

Amorphous tungsten trioxide (a-WO₃) has emerged as an ideal candidate material for non-volatile memristors due to its high concentration of oxygen vacancies, moderate band gap, and compatibility with CMOS technology. This gives it broad application prospects in neuromorphic computing systems. However, its poor analog switching performance severely hinders its practical application in high-efficiency artificial intelligence data processing. To enhance the analog switching performance of WO₃ memristors, in this study radio frequency (RF) magnetron sputtering technology is adopted to deposit a five-layer amorphous tungsten trioxide (a-WO₃) thin film with a gradient distribution of oxygen vacancy concentration on a platinum/silicon (Pt/Si) substrate. X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) analysis confirms that the oxygen vacancy (V_O) concentration decreases gradually from the bottom to the top layer, verifying the successful fabrication of the five-layer a-WO₃ thin film with a gradient distribution of oxygen vacancies. Compared with a-WO₃ memristors with a uniform V_O concentration, the device with the V_O gradient distribution exhibits highly reliable analog switching characteristics (low cycle-to-cycle variability, high linearity in potentiation/depression processes), ultra-long data retention (>10⁴ s), and self-current-limiting behavior. An artificial neural network (ANN) based on this structured memristor achieves a handwritten digit recognition accuracy of 97.64%. The RS essence of a-WO₃ memristors with V_O concentration gradient distribution lies in the formation/rupture of V_O-dominated conductive filaments (CFs). The V_O gradient distribution enables controllable evolution of CFs by modifying the electric field and ion migration rules. During CF formation, oxygen ions migrate toward the top electrode, and V_O accumulates gradually first in the bottom electrode region; meanwhile, the electric field induced by V_O

* Project supported by the Natural Science Foundation of Shaanxi Province, China (Grant No. 2025JC-YBMS-001) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11905119).

[†] Corresponding author. E-mail: zhuyuan@sust.edu.cn

gradient suppresses the local abrupt growth of CFs, leading to the formation of uniform non-conical structures and avoiding resistance mutation. During CF rupture, ions migrate toward the bottom electrode, and non-conical CFs can rupture synchronously and progressively, ultimately achieving precise regulation of multi-level conductance. The conduction mechanism shows that the low-voltage region of the high-resistance state (HRS) exhibits an I - V linear relationship, corresponding to the ohmic conduction mechanism. In the high-voltage region of HRS, I has a linear relationship with both V^2 and $V^{2.5}$, which conforms to the space-charge-limited current (SCLC) theory. The gradient distribution of oxygen vacancies (V_O) regulates the formation and rupture of conductive filaments (CFs), thereby solving the core problem of poor analog switching performance in traditional WO_3 memristors. This provides a critical “ V_O gradient regulation” design strategy for high-density neuromorphic computing. It is expected to play a significant role in fields such as image recognition, speech recognition, and intelligent robots.



Keywords: memristor, analog resistive switching, amorphous WO_3 , oxygen vacancy, neuromorphic computing

DOI: 10.7498/aps.75.20251348

CSTR: 32037.14.aps.75.20251348

氧空位浓度梯度分布的非晶 WO_3 模拟忆阻器在神经形态计算中的应用

王红军 张苗 张云飞 王鑫 周静 朱媛媛

Application of amorphous- WO_3 simulated memristors with oxygen vacancy concentration gradients in neuromorphic computing

WANG Hongjun ZHANG Miao ZHANG Yunfei WANG Xin ZHOU Jing ZHU Yuanyuan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 040704 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20251348

CSTR: 32037.14.aps.75.20251348

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251348>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于氧空位调控的 HfO_x 忆阻器稳定性研究

Stability of HfO_x memristors based on oxygen vacancy regulation

物理学报. 2025, 74(21): 217301 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250971>

忆阻类脑计算

Memristive brain-like computing

物理学报. 2022, 71(14): 140501 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220666>

面向类脑计算的低电压忆阻器研究进展

Recent progress of low-voltage memristor for neuromorphic computing

物理学报. 2024, 73(20): 207302 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241022>

N型局部有源忆阻器的神经形态行为

Neuromorphic behaviors of N-type locally-active memristor

物理学报. 2022, 71(5): 050502 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212017>

基于3D-NAND的神经形态计算

3D-NAND flash memory based neuromorphic computing

物理学报. 2022, 71(21): 210702 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220974>

等离子体处理构建梯度分布氧空位提升三氧化钨电致变色性能

Improving electrochromic properties of tungsten trioxide by constructing gradient distribution oxygen vacancies through plasma treatment

物理学报. 2025, 74(5): 058201 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241663>