

专题: 功能氧化物薄膜新奇物理性质 · 封面文章

钙钛矿相界面插层对 SrFeO_x 基忆阻器的性能提升*

陈开辉¹⁾²⁾ 樊贞^{1)2)†} 董帅¹⁾ 李文杰¹⁾ 陈奕宏¹⁾ 田国¹⁾ 陈德杨¹⁾
秦明辉¹⁾ 曾敏¹⁾ 陆旭兵¹⁾ 周国富²⁾ 高兴森¹⁾ 刘俊明³⁾

1) (华南师范大学华南先进光电子研究院先进材料研究所, 广州 510006)

2) (华南师范大学华南先进光电子研究院, 广东省光信息材料与技术重点实验室和国家绿色光电子国际联合研究中心, 广州 510006)

3) (南京大学固体微结构物理国家重点实验室, 南京 210093)

(2022年10月10日收到; 2022年12月2日收到修改稿)

SrFeO_x (SFO) 是一种能在 $\text{SrFeO}_{2.5}$ 钙铁石 (BM) 相和 SrFeO_3 钙钛矿 (PV) 相之间发生可逆拓扑相变的材料. 这种相变能显著改变电导却维持晶格框架不变, 使 SFO 成为一种可靠的阻变材料. 目前大部分 SFO 基忆阻器使用单层 BM-SFO 作为阻变功能层, 这种器件一般表现出突变型阻变行为, 因而其应用被局限于两态存储. 对于神经形态计算等应用, 单层 BM-SFO 忆阻器存在阻态数少、阻值波动大等问题. 为解决这些问题, 本研究设计出 BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器, 其中 PV-SFO 层为富氧界面插层, 可在导电细丝形成过程中提供大量氧离子并在断裂过程中回收氧离子, 使导电细丝的几何尺寸 (如直径) 在更大范围内可调, 从而获得更多、更连续且稳定的阻态, 可用于模拟长时程增强和抑制等突触行为. 基于该器件仿真构建了全连接神经网络 (ANN), 在手写体数字光学识别 (ORHD) 数据集进行在线训练后获得了 86.3% 的识别准确率, 相比于单层忆阻器基 ANN 的准确率提升 69.3%. 本研究为 SFO 基忆阻器性能调控提供了一种新方法, 并展示了它们作为人工突触器件在神经形态计算方面的应用潜力.

关键词: SrFeO_x 基忆阻器, 人工突触, 神经网络, 界面插层**PACS:** 73.40.-c, 73.50.-h, 73.61.-r, 84.35.+i**DOI:** 10.7498/aps.72.20221934

1 引言

人工智能 (AI) 技术在近十多年取得了巨大的进步, 特别在图像识别、辅助驾驶、数据挖掘等方面存在大量应用. 然而, 随着 AI 模型参数规模的急剧增长, 对硬件算力的需求越来越高. 而传统冯·诺伊曼架构计算机中处理器和内存是相互分离的, 数据在二者之间反复传输会导致高延时和高能耗, 难以满足 AI 等数据密集型应用的需求. 与传

统计算机不同, 受人脑启发的神经形态计算系统具有存算一体、高度并行、超低能耗等特点, 天然适合作为 AI 专用硬件. 神经形态计算系统的基本单元是能够模拟神经元或突触功能的神经形态器件, 典型代表之一是忆阻器, 它是一种受外场调控的电阻开关, 其电导值可用于模拟突触权重. 此外, 忆阻器具有集成密度高、操作速度快、功耗低等优点, 因而成为近年来备受关注的—类人工突触器件.

目前忆阻器大多基于 HfO_x ^[1-6], TaO_x ^[7-11], TiO_x ^[12-17] 等氧化物, 这些氧化物在阻变过程中氧

* 国家自然科学基金 (批准号: 92163210, U1932125, 52172143) 和广州市科技计划 (批准号: 202201000008) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: fanzhen@m.scnu.edu.cn

含量的大量变化通常会导致显著的结构变化^[18], 使得阻态难以稳定地往复调控. 而以 SrFeO_x (SFO) 为代表的拓扑相变材料, 能够在绝缘钙铁石 (brownmillerite, BM) 相和导电钙钛矿 (perovskite, PV) 相 (氧含量 x 分别约为 2.5 和 3) 之间可逆转变, 同时晶格框架保持不变, 因此 SFO 是一种稳定可靠的阻变材料. 此外, BM-SFO 和 PV-SFO 两相之间能量差很小 (约 0.1 eV)^[19], 因此使用较小外加电压便能诱导两相转变^[20,21], 有利于实现低压、低能耗操作.

以上特性使 SFO 基忆阻器成为近年来的研究热点. 比如, Acharya 等^[22] 在 (001) 取向 SrTiO_3 衬底上制备了 $\text{Au}/\text{BM-SFO}/\text{SrRuO}_3$ (SRO) 忆阻器 (如图 1(a) 所示), 获得了高达 60 的开关比、7000 s 以上的保持时间以及超过 1000 次的循环次数. 而 Tian 等^[23] 深入研究了该忆阻器的阻变机理, 结合高分辨透射电镜和导电原子力显微镜直接观察到电场作用下 PV-SFO 导电细丝在 BM-SFO 绝缘基质中的形成与断裂, 证实了导电细丝型阻变机理; 观测到 PV 相导电细丝平均直径仅约为 10 nm 量级, 使得器件横向尺寸能够微缩至百纳米量级, 并实现了阻变性能的提升: 开关比提升至 10^4 , 保持时间增长至 10^5 秒, 且循环次数增加至 10^7 次. 后续还有大量关于单层 BM-SFO 忆阻器的研究^[24,25], 虽然它们均获得了优异的阻变性能, 但也都表明这种单层忆阻器的阻变行为是突变型的, 即高阻态 (high resistance state, HRS) 和低阻态 (low resistance state, LRS) 之间的切换十分突然, 因而其应用被局限于两态存储^[26]. 而对于人工突触器件应用, 单层忆阻器仍存在阻态数少、阻值波动大、脉冲响应非线性高等问题 (如图 1(c) 所示). 因此, 有必要对 SFO 基忆阻器的性能进行调控, 获得连续转变的多阻态, 以满足人工突触器件应用的需求.

本文设计并制备了一种 BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器 (如图 1(b) 所示), 其中 PV-SFO 层为富氧的界面插层, 可在导电细丝形成过程中提供大量氧离子并在其断裂过程中回收氧离子, 使得导电细丝的几何尺寸 (如直径) 具有更大的可调范围, 有利于获得更多、更连续的阻态 (如图 1(d) 所示). 实验结果表明相比于前述单层忆阻器, 双层忆阻器的阻变参数均匀性更佳且切换电压更小, 并表现出连

续可调且稳定的多阻态, 成功模拟了长时程增强和抑制等突触行为. 仿真结果表明双层忆阻器基 ANN 的图像识别准确率为 86.3%, 相比于单层忆阻器基 ANN 的准确率提升了 69.3%.

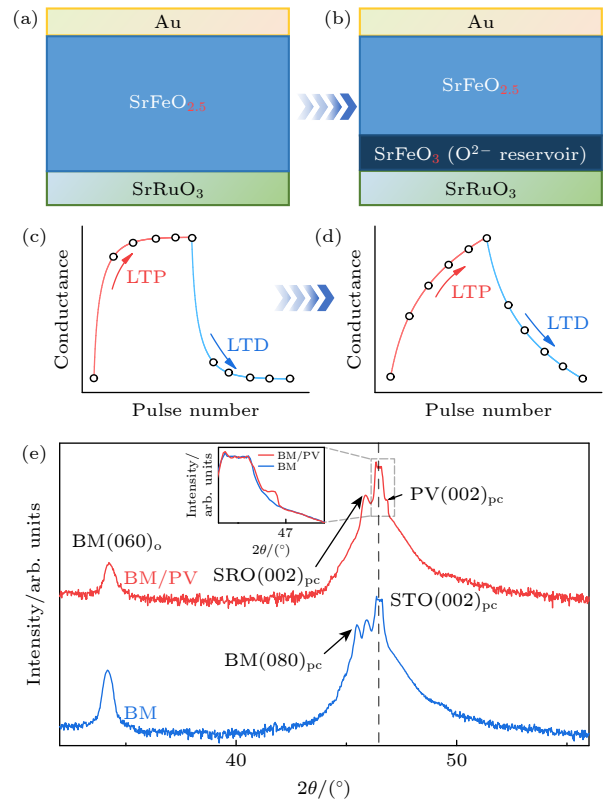


图 1 (a) BM-SFO 单层忆阻器、(b) BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器结构示意图; (c) 单层忆阻器、(d) 双层忆阻器的脉冲响应示意图, 其中 LTP 和 LTD 分别表示长时程增强和抑制; (e) BM-SFO/PV-SFO 双层膜 (红色) 和 BM-SFO 单层膜 (蓝色) 的 XRD θ - 2θ 扫描图

Fig. 1. Schematic diagram of the structures of the (a) BM-SFO single-layer memristor and (b) BM-SFO/PV-SFO double-layer memristor; schematic curves showing the responses of the (c) single-layer memristor and (d) double-layer memristor to potentiation and depression pulses, i.e., the long-term potentiation and depression (LTP and LTD, respectively) characteristics; (e) XRD θ - 2θ scans of BM-SFO/PV-SFO double-layer film (red) and BM-SFO single-layer film (blue).

2 BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器的制备

$\text{Au}/\text{BM-SFO}/\text{PV-SFO}/\text{SRO}$ 双层忆阻器的器件结构示意图如图 1(b) 所示. 其中, Au 和 SRO (厚度约 55 nm) 分别为顶、底电极, 而阻变功能层由 BM-SFO 基体层 (厚度约 70 nm) 和 PV-SFO 界面插层 (厚度约 7 nm) 构成. 双层忆阻器的制备

流程如下: 首先, 利用脉冲激光沉积 (KrF 受激准分子激光器; $\lambda = 248 \text{ nm}$) 在 STO (001) 衬底上沉积一层 SRO 底电极, 沉积温度为 $650 \text{ }^\circ\text{C}$, 氧气压力为 15 Pa , 激光能量密度和频率分别为 0.97 J/cm^2 和 5 Hz . 然后, 在相同温度、 9 Pa 氧气压力下沉积一层 PV-SFO 薄膜, 使用的激光能量密度和频率分别为 0.97 J/cm^2 和 4 Hz . 最后, 在改变氧气压力为 1 Pa 而其他条件不变情况下, 沉积一层 BM-SFO 薄膜. 沉积完毕后, 在 1 Pa 氧气压力下以 $10 \text{ }^\circ\text{C/min}$ 的速率将薄膜冷却至室温. 退火结束后, 在薄膜表面覆盖不锈钢掩模版 (直径约为 $100 \text{ }\mu\text{m}$), 利用磁控溅射在薄膜上镀 Au 顶电极.

图 1(e) 展示了 BM-SFO/PV-SFO 双层膜的 X 射线衍射 θ - 2θ 图谱, 以及对照组 BM-SFO 单层膜的结果. 从图 1(e) 可以看出, 双层膜和单层膜均表现出 BM 相的 (060)_o 和 (080)_o 衍射峰 (下标“o”表示正交晶胞), 这种超晶格衍射峰是由于 BM 相中氧八面体层和四面体层交替堆叠的结构造成的, 属于 BM 相的特征峰. 双层膜还表现出 PV 相的 (002)_{pc} 衍射峰 (下标“pc”为立方晶胞), 峰强度较弱是由于 PV 层太薄 (厚度约 7 nm) 造成的; 而作为对照组, 单层膜没有表现出 PV 相的 (002)_{pc} 衍射峰. 以上 XRD 结果表明双层膜中 BM 相和 PV 相均已形成.

3 BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器的性能测试

3.1 阻变性能

使用 Keithley 6430 源表和探针台研究了 Au/BM-SFO/PV-SFO/SRO 双层忆阻器的阻变特性, 并用 Au/BM-SFO/SRO 单层忆阻器作为对照组. 在测试过程中, 外部偏压总是施加到 Au 顶部电极, 而 SRO 底部电极接地. 双层和单层忆阻器都需要先进行电铸来激活阻变行为, 但双层忆阻器所需要的电铸电压更低 (见补充材料图 S1 (online)). 电铸后的双层和单层忆阻器的电流-电压 (I - V) 特性曲线如图 2(a) 所示. 两种忆阻器均表现出正向 Set、负向 Reset 的双极性阻变行为, 且 I - V 曲线拟合结果表明阻变机理为导电细丝通/断 (见补充材料图 S2 (online)). 进一步对比发现双层忆阻器的 LRS 电流更低, 这可能是由于富氧的 PV-SFO 界面插层为 BM-SFO 基体中 PV-SFO 导电细丝的形成提供了大量的氧离子, 使导电细丝变粗, 进而降低了电阻 (如图 3(a) 和图 3(c) 的对比). 此外, 双层忆阻器的 Set 和 Reset 电压更小, 这可能归因于 PV-SFO 的氧空位形成能相比于 SRO 更低 [27–29], 使得氧离子的提供和回收更容易.

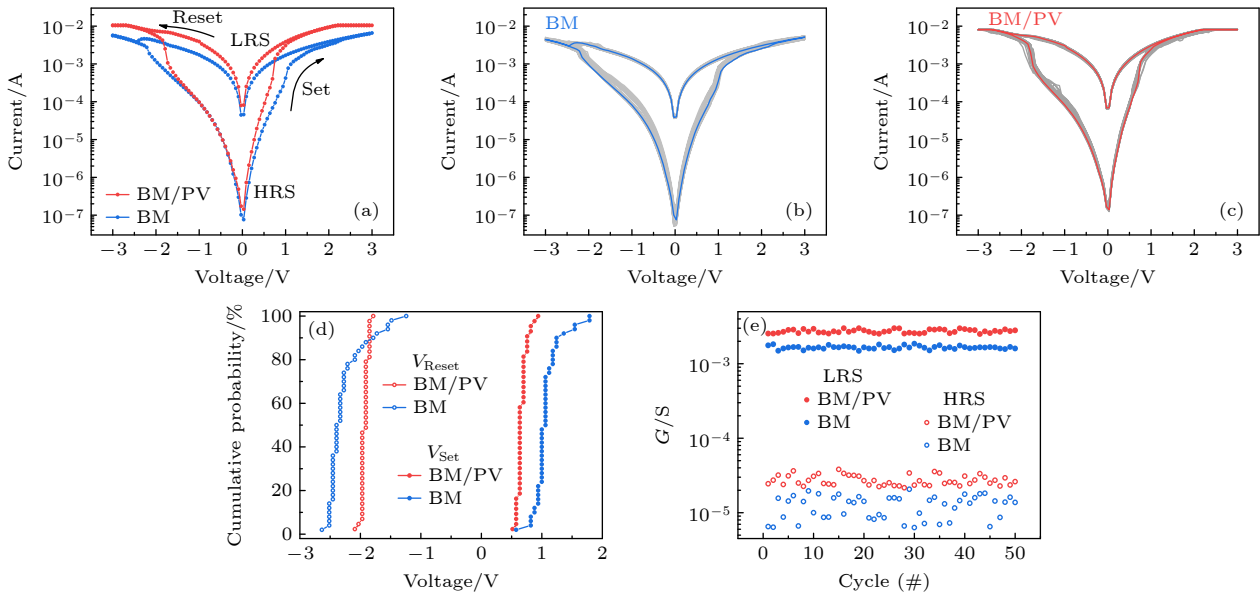


图 2 (a) BM-SFO 单层忆阻器和 BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器的 I - V 特性曲线对比; (b) 单层忆阻器和 (c) 双层忆阻器的 I - V 特性曲线 (50 次循环); (d) 单层忆阻器和双层忆阻器的切换电压分布; (e) 单层忆阻器和双层忆阻器的 LRS 和 HRS 电导分布

Fig. 2. (a) Comparison of I - V characteristics of BM-SFO single-layer and BM-SFO/PV-SFO double-layer memristors; 50 cycles of I - V characteristics of (b) single-layer memristor and (c) double-layer memristor; (d) statistical distributions of switching voltages of single-layer and double-layer memristors; (e) statistical distributions of LRS and HRS conductances of single-layer and double-layer memristors.

图 2(b) 和图 2(c) 分别展示了单层和双层忆阻器 50 个循环下的 $I-V$ 曲线, 可以看出双层忆阻器 $I-V$ 曲线重叠情况更好, 表明阻变可重复性更高. 利用 50 个循环下 $I-V$ 曲线进行统计分析, 可以得到单层和双层忆阻器切换电压分布对比, 如图 2(d) 所示. 不难看出双层忆阻器切换电压 (V_{set} : 0.6 V; V_{reset} : -1.9 V) 明显小于单层 SFO 器件 (V_{set} : 1.1 V; V_{reset} : -2.4 V), 而且分布也更加集中, 原因如上一段所述.

利用 50 个循环的 $I-V$ 曲线还可统计得到两种忆阻器的电导值分布对比, 如图 2(e) 所示. 可以看出两种忆阻器 LRS 的电导值分布都比较集中, 而双层忆阻器 HRS 的电导值分布明显比单层忆阻器更集中, 这同样说明 PV-SFO 界面插层的引入使得导电细丝断裂过程更加可控. 究其原因, 可能是因为双层忆阻器中导电细丝断裂部分更短 (如图 3(b) 和图 3(d) 的对比, 相关证据见补充材料图 S2 和图 S3 (online)), 所以断裂的随机性相对更小.

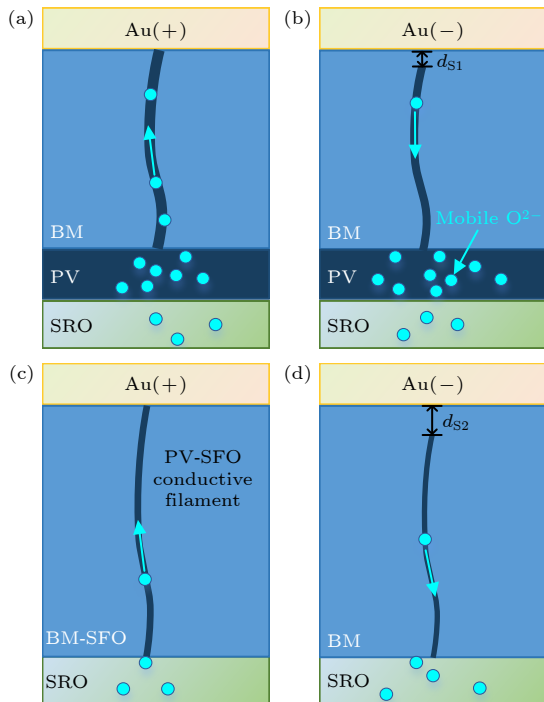


图 3 BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器导电细丝 (a) 连接和 (b) 断裂示意图; BM-SFO 单层忆阻器导电细丝 (c) 连接和 (d) 断裂示意图

Fig. 3. Schematic diagrams showing the conductive filament (a) connection and (b) rupture in the BM-SFO/PV-SFO double-layer memristor; schematic diagrams showing the conductive filament (c) connection and (d) rupture in the BM-SFO single-layer memristor.

以上结果表明具有 PV-SFO 界面插层的双层膜忆阻器实现了显著的阻变性能提升, 包括 LRS 电流增大、切换电压降低、阻变可重复性提高、阻变参数均匀性提升等.

3.2 突触性能

在获得优异的阻变性能后, 进一步对双层忆阻器的脉冲响应进行测试, 以探究其作为人工突触器件的可行性. 本测试中仍使用单层忆阻器作为对照组. 首先对双层和单层忆阻器分别施加 $0 \rightarrow 0.7$ V, $0 \rightarrow 0.9$ V 直流电压扫描, 将它们都置于 LRS. 然后对它们施加不同幅值的正或负脉冲串, 每个脉冲串包含 50 个等幅值、等宽度 (0.1 s) 的写脉冲, 并在每个写入脉冲后施加一个 0.2 V/0.1 s 的读脉冲用于读取电导. 图 4(a) 展示了单层忆阻器电导随施加正脉冲的演变, 可以发现施加正脉冲很难使已处于 LRS 的单层忆阻器的电导进一步增加, 即使脉冲幅值增加到 1.5 V, 单层忆阻器的电导增加幅度仍很小且为突变. 相比之下, 如图 4(b) 所示, 双层忆阻器在脉冲幅值为 0.6 V 及以上时, 便能实现电导大幅增加且为连续变化. LRS 电导的持续增大可能来源于导电细丝横向生长^[30]. PV-SFO 界面插层能够持续提供大量氧离子, 因而双层忆阻器在 LRS 下仍能够实现导电细丝持续长粗 (如图 3(a)); 而单层忆阻器则由于 SRO 层供氧能力不足, 无法让导电细丝持续长粗 (如图 3(c)).

类似的电导突变与连续渐变的差异, 在单层和双层忆阻器负脉冲响应中也能观察到. 如图 4(c) 所示, 当脉冲幅值不超过 -2.2 V 时, 单层忆阻器的电导基本不变; 而当脉冲幅值达到 -2.4 V 时, 单层忆阻器突然从 LRS 切换至 HRS. 相比而言, 双层忆阻器在不同脉冲幅值下均表现出连续变化的电导, 如图 4(d) 所示.

利用双层忆阻器的渐变型阻变行为, 可进一步对生物突触的长时程增强 (long-term potentiation, LTP) 和抑制 (long-term depression, LTD) 进行模拟. 如图 5(a) 插图所示, 对器件连续施加 16 个幅值为 0.7 V、宽度为 0.1 s 的正脉冲, 然后连续施加 16 个幅值为 -1.4 V、宽度为 0.1 s 的负脉冲, 在每两个写入脉冲之间施加 0.2 V 读电压以读取电导. 如图 5(a) 所示, 器件电导随着正脉冲的施加而连续增加, 并随负脉冲的施加而连续减少, 分别模拟了 LTP 和 LTD 过程, 并且 LTP 和 LTD 过程

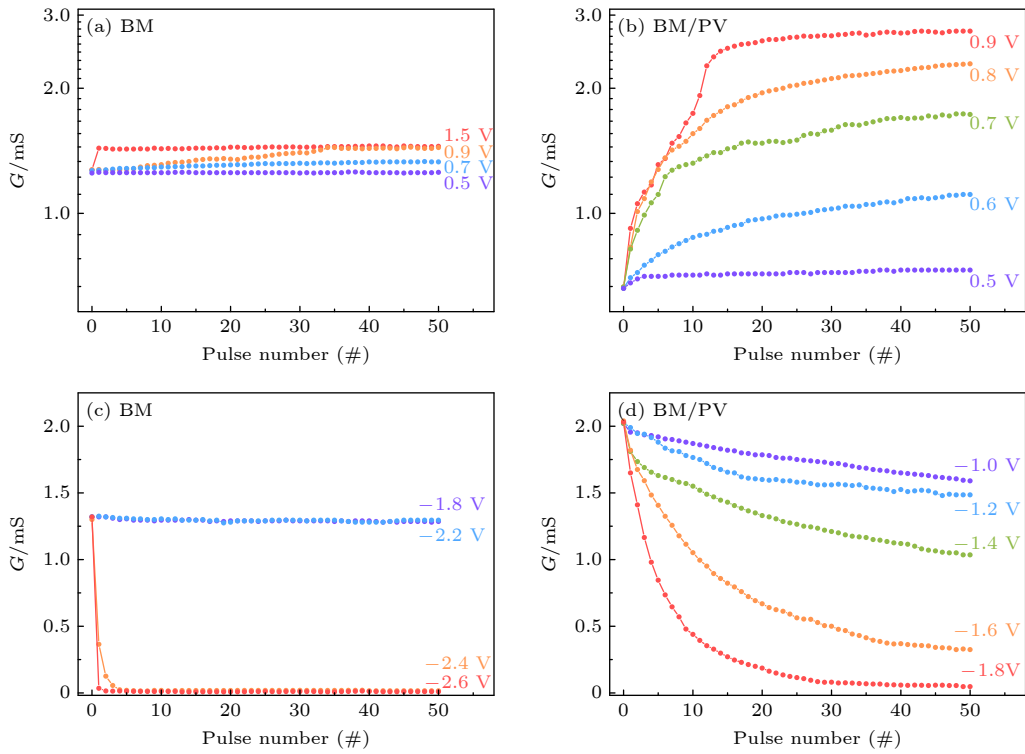


图 4 (a) BM-SFO 单层忆阻器和 (b) BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器在不同幅值正脉冲串作用下的电导变化; (c) 单层忆阻器和 (d) 双层忆阻器在不同幅值负脉冲串作用下的电导变化

Fig. 4. Conductance evolutions of (a) BM-SFO single-layer memristor and (b) BM-SFO/PV-SFO double-layer memristor under positive pulse trains with different amplitudes; conductance evolutions of (c) single-layer memristor and (d) double-layer memristor under negative pulse trains with different amplitudes.

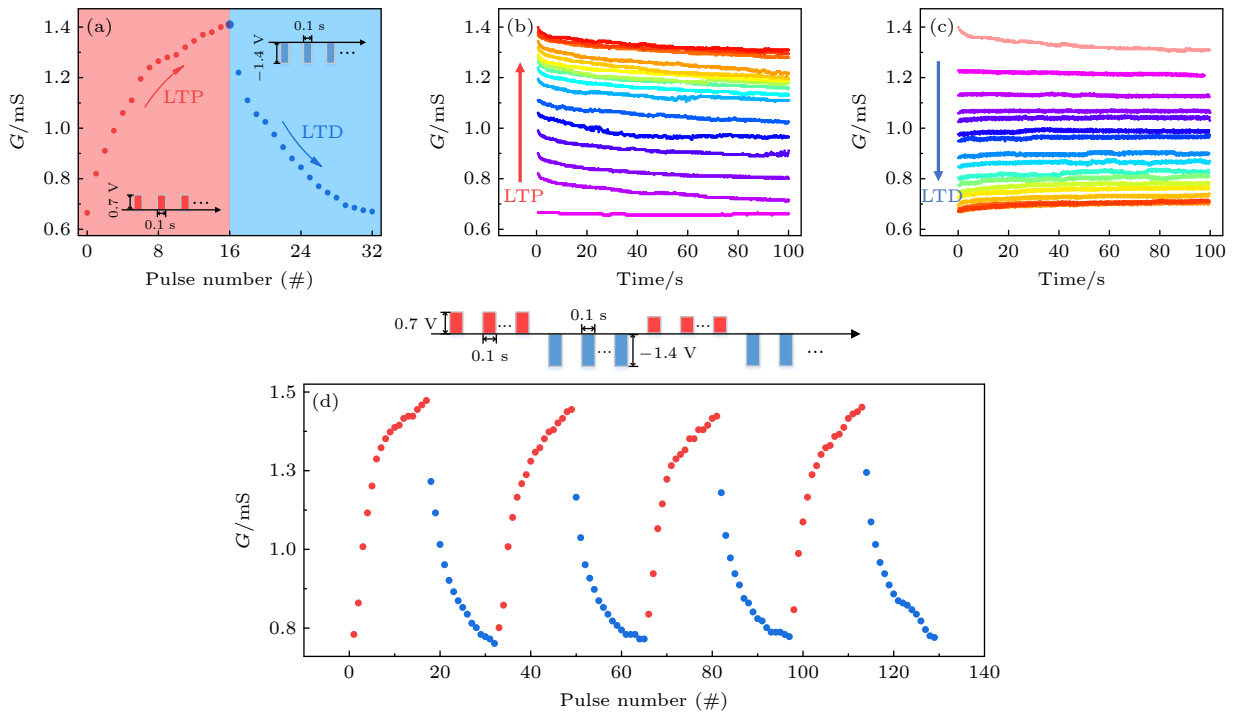


图 5 (a) BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器的 LTP 和 LTD 特性曲线, 所施加脉冲如插图所示; 双层忆阻器在 (b) LTP 和 (c) LTD 过程中电导态保持特性; (d) 双层忆阻器多次循环下的 LTP 和 LTD 特性曲线, 上方插图展示了所施加脉冲

Fig. 5. (a) LTP and LTD characteristics of the BM-SFO/PV-SFO double-layer memristor, and the insets show the schematics of applied pulses; retention of the conductance states of the double-layer memristor during the (b) LTP and (c) LTD processes; (d) multi-cycle LTP and LTD characteristics of the double-layer memristor, and the upper inset shows schematics of the applied pulses.

表 1 基于不同材料的导电细丝型忆阻器的主要器件性能
Table 1. Device performance of filament-type RS memories based on different materials.

器件	开关比	Set电压/V	Reset电压/V	阻态数	文献
TiN/Hf/HfO _x /TiN	>10	+1.1	+1.8	2	[31]
Pt/Ta ₂ O _{5-x} /TaO _{2-x} /Pt	>10	-4.5	+6	2	[32, 33]
Ag/NiO _x /Pt	>10	±1.1	±0.5	2	[34, 35]
SiO ₂ /TiN/WO _x /SiO ₂	≈10	+3	+3.3	2—3	[36, 37]
Al/TiO _x /ITO	>10 ²	+2	-2	2	[38]
Ag/ZnO _x /Pt	≈10 ⁷	+3	-3	2	[39]
Pt/Ti/α-SrTiO _x /Pt	>10 ²	-1.35	+1.9	2	[40]
Au/Cr/BaTiO ₃ /Nb:SrTiO ₃ /In	>10 ⁴	-7	-1	8	[41]
Au/BiFeO ₃ /Pt	>10	+4	-6	2	[42]
Au/SrFeO _{2.5} /SrRuO ₃	≈10 ²	-5	+3	2	[23]
Ag/STO:Ag/SiO ₂ /p++-Si	≈10 ²	+3	-3	60	[43]
Au/HfSe ₂ /Ti	≈10 ²	+1	-1.2	26	[44]
Ag/Ti ₃ C ₂ T _x NS/Pt	≈10 ²	+3	+0.5	12	[45]
Au/SrFeO _{2.5} /SrFeO ₃ /SrRuO ₃	≈10 ²	+0.7	-1.4	32	本工作

的非线性度较小 (约 5.1). 相比之下, 单层忆阻器的 LTP 和 LTD 行为则表现出极大的非线性度和极少的中间阻态 (见补充材料图 S4 (online)). 此外, 如图 5(b) 和图 5(c) 所示, 双层忆阻器在 LTP 和 LTD 过程中, 电导经过短暂的弛豫后都趋于稳定, 表明其良好的阻态保持特性. 图 5(d) 还展示了双层忆阻器多个循环的 LTP-LTD 过程, 可以看出不同循环的电导演变差异较小, 说明 cycle-to-cycle 差异性较小.

表 1 总结了基于不同材料的导电细丝型忆阻器的主要器件性能. 从表 1 可看出, 本工作的 BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器的优势之一是阻态数较多, 有利于突触权重模拟和神经形态计算. 优势之二是 Set/Reset 电压较小, 有利于低压、低能耗操作. 而开关比则处于中等水平, 仍有一定的提升空间.

4 神经形态计算仿真

上述结果已表明双层忆阻器实现了稳定、可重复的 LTP/LTD 行为, 有望作为人工突触器件应用于神经形态计算中. 为此仿真构建了基于双层忆阻器的全连接神经网络 (artificial neural network, ANN), 测试其图像识别能力, 并用单层忆阻器基

ANN 作为对照组. 如图 6(a) 所示, 并使用的数据集为手写体数字光学识别数据集 (optical recognition of handwritten digits, ORHD) 数据集, 它包含从“0”到“9”的 5620 张 8×8 像素的手写数字图像, 随机分为训练集 (3823 张) 和测试集 (1797 张). 所构建的 ANN 为两层结构, 包含 64 个输入神经元、10 个输出神经元以及 640 (64 × 10) 个突触. ANN 在 ORHD 数据集上进行在线训练, 基于反向传播算法更新突触权重. 突触权重矩阵存储在忆阻器交叉阵列中 (图 6(b)), 并且权重值映射到实际忆阻器 LTP 和 LTD 过程中的电导值上 (图 5(a)). 每个 epoch 训练结束后, 将测试集图片输入 ANN 中以测试其识别准确率.

如图 6(c) 所示, 单层忆阻器基 ANN 经过 10 个 epoch 训练后的准确率仅为 17.0%; 而使用双层忆阻器作为人工突触, ANN 的准确率大幅提升了 69.3%, 达到 86.3%. 图 6(d) 为双层忆阻器基 ANN 测试集的混淆矩阵, 可以看出高亮部分集中于对角线上, 说明大部分图片均被正确识别.

双层忆阻器基 ANN 准确率的提升可归因为较小的 LTP/LTD 非线性度 (约 5.1) 和较多的中间阻态数 (LTP 和 LTD 过程均有 16 态), 使得训练过程中实际权重值更加接近对应理想值, 从而提升准确率.

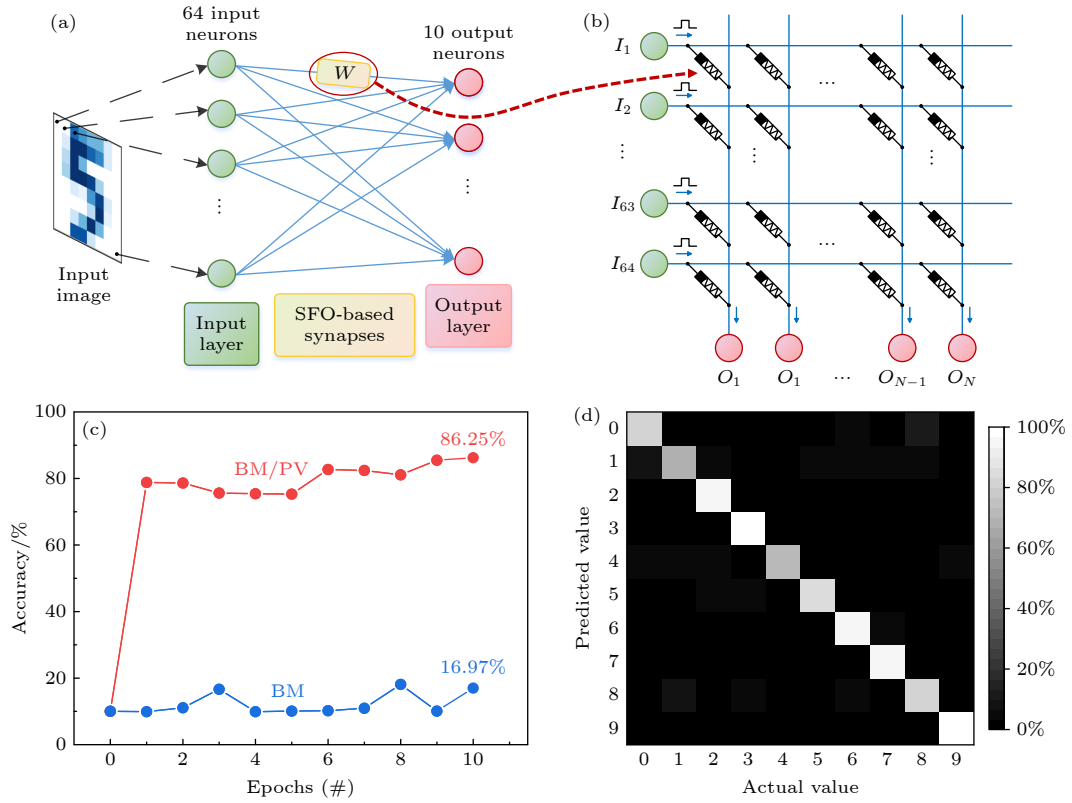


图 6 (a) 仿真构建的以 SFO 基忆阻器作为突触的全连接神经网络 (ANN) 结构示意图, W 为连接输入层和输出层忆阻器突触的权重; (b) SFO 基忆阻器交叉阵列示意图, 其中 I 为输入神经元, O 为输出神经元; (c) 以 BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器和 BM-SFO 单层忆阻器作为突触的 ANN 的准确率对比; (d) 双层忆阻器基 ANN 的测试结果的混淆矩阵

Fig. 6. (a) Schematic diagrams of the simulated fully connected neural network (ANN) using SFO-based memristors as synapses, W is the weight of the memristor synapse connecting the input layer and the output layer; (b) schematic diagram of the SFO-based memristor crossbar, where I is the input neuron and O is the output neuron; (c) comparison of accuracies of BM-SFO/PV-SFO double-layer memristor-based ANN and BM-SFO single-layer memristor-based ANN; (d) confusion matrix of the test results from the double-layer memristor-based ANN.

表 2 不同忆阻器作为突触的 ANN 图像识别准确率对比

Table 2. Image recognition accuracy comparison between ANNs using different memristors as synapses.

器件	阻态数	ANN结构	准确率/%	数据集	文献
Pt/Li ₄ Ti ₅ O ₁₂ /TiO ₂ /Pt	100	3层网络(400×100×10)	87	MNIST(20×20)	[46]
Pt/TaO _y /NP TaO _x /Ta	200	3层网络(784×7840×10)	89	MNIST(28×28)	[47]
Ti/PdSe ₂ /Au	200	3层网络(400×100×10)	94	MNIST(20×20)	[48]
Ta/HfO ₂ /Pt	200	3层网络(64×54×10)	91	MNIST (8×8, 由20×20 下采样获得)	[49]
Ag/WSe ₂ QDs/ La _{0.3} Sr _{0.7} MnO ₃ /SrTiO ₃	70	3层网络 (NA)	91	ORHD(8×8)	[50]
Au/SrFeO _{2.5} /SrFeO ₃ /SrRuO _x	32	2层网络 (64×10)	86	ORHD(8×8)	本工作

表 2 展示了不同忆阻器作为突触的 ANN 图像识别准确率的对比, 本工作中 BM-SFO/PV-SFO 双层忆阻器作为突触的 ANN 图像识别准确率并不算高, 与其他器件存在一定差距, 尚不能满足实际应用需求. 分析认为主要的原因是器件的阻态数仍不够多, 以及选用的网络结构过于简单. 在后续研究中, 拟从以下两方面提升 SFO 基忆阻器作为突触的 ANN 的性能: 1) 优化 BM-SFO 和 PV-SFO

层厚度, 并对脉冲进行更合适的编程设计, 从而获得更精细的阻态变化; 2) 选择更复杂网络结构, 增加隐藏层数量以提升网络性能 [51].

5 结论

本文提出并制备了一种 Au/BM-SFO/PV-SFO/SRO 双层忆阻器, 其中 BM-SFO 为基底层, 而 PV-

SFO 层为界面插层. 相比于 Au/BM-SFO/SRO 单层忆阻器, 双层忆阻器表现出更低的切换电压、更高的阻变可重复性和参数均匀性, 这可能是由于富氧的 PV-SFO 界面插层能够提供和回收大量氧离子, 使导电细丝形成和断裂更加容易和可控. 此外, 单层忆阻器表现出突变型阻变行为, 而双层忆阻器表现出渐变型阻变行为, 这可能也是由于 PV-SFO 界面插层的引入有利于导电细丝横向尺寸的大范围调控, 从而获得更多、更连续的阻态. 进一步证明了双层忆阻器能够模拟 LTP 和 LTD 突触行为, 基于双层忆阻器突触仿真构建了 ANN, 在识别 ORHD 数据集手写数字的测试中获得了 86.3% 的准确率, 相比于单层忆阻器基 ANN 的准确率提升了 69.3%. 本文利用界面插层方法实现了 SFO 基忆阻器的性能提升, 并证明了其作为人工突触器件应用于神经形态计算的潜力.

参考文献

- [1] Hsu C C, Sun J K, Tsao C C, Chen Y T 2017 *Physica B* **508** 98
- [2] Vaccaro F, Brivio S, Perotto S, Mauri A G, Spiga S 2022 *Neuromorph. Comput. Eng.* **2** 021003
- [3] Li C, Li W, Wang F, Zhang J, Sun J, Shen J, Hu K, Zhao J, Zhang K 2020 *Mater. Sci. Semicond. Process.* **116** 105103
- [4] Clima S, Chen Y Y, Fantini A, Goux L, Degraeve R, Govoreanu B, Pourtois G, Jurczak M 2015 *IEEE Electron Device Lett.* **36** 769
- [5] Jiang Y, Zhang K, Hu K, Zhang Y, Liang A, Song Z, Song S, Wang F 2021 *Mater. Sci. Semicond. Process.* **136** 106131
- [6] Ban S, Kim O 2014 *Jpn. J. Appl. Phys.* **53** 06JE15
- [7] Lubben M, Karakolis P, Vassilios I, Mormand P, Dimitrakis P, Valov I 2015 *Adv. Mater.* **28** 6202
- [8] Stecconi T, Guido R, Berchialla L, Porta A L, Weiss J, Popoff Y, Halter M, Sousa M, Horst F, Davila D, Drechsler U, Dittmann R, Offrein B J, Bragaglia V 2022 *Adv. Electron. Mater.* **8** 220048
- [9] Marinella M J, Dalton S M, Mickel P R, Dodd P E, Shaneyfelt M R, Bielejec E, Vizkelethy G, Kotula P G 2012 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **59** 2987
- [10] Hur J H, Lee M J, Lee C B, Kim Y B, Kim C J 2010 *Phys. Rev. B* **82** 155321
- [11] Hughart D R, Lohn A J, Mickel P R, Dalton S M, Dodd P E, Shaneyfelt M R, Silva A I, Bielejec E, Vizkelethy G, Marshall M T, Mclain M L, Marinella M J 2013 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **60** 4512
- [12] Palagushkin A N, Roshchupkin D V, Yudkin F A, Irzhak D V, Keplinger O, Privezentsev V V 2018 *J. Appl. Phys.* **124** 205109
- [13] Kim T H, Kim M H, Bang S, Lee D K, Kim S, Cho S, Park B G 2020 *IEEE Trans. Nanotechnol.* **19** 475
- [14] Kim M, Yoo K, Jeon S P, Park S K, Kim Y H 2020 *Micromachines* **11** 154
- [15] Jang J, Gi S, Yeo I, Choi S, Jang S, Ham S, Lee B, Wang G 2022 *Adv. Sci.* **9** 2201117
- [16] Zhou G, Sun B, Hu X, Sun L, Zou Z, Xiao B, Qiu W, Wu B, Li J, Han J, Liao L, Xu C, Xiao G, Xiao L, Cheng J, Zheng S, Wang L, Song Q, Duan S 2021 *Adv. Sci.* **8** 2003765
- [17] Liu J, Yang H, Ma Z, Chen K, Huang X, Wang K 2020 *J. Appl. Phys.* **128** 184902
- [18] Kwon D H, Kim K M, Jang J H, Jeon J M, Lee M H, Kim G H, Li X S, Park G S, Lee B, Han S, Kim M, Hwang C S 2010 *Nat. Nanotechnol.* **5** 148
- [19] Khare A, Shin D, Yoo T S, Kim M, Kang T D, Lee J, Roh S, Jung I H, Hwang J, Kim S W, Noh T W, Ohta H, Choi W S 2017 *Adv. Mater.* **29** 1606566
- [20] Saleem M S, Cui B, Song C, Sun Y, Gu Y, Zhang R, Fayaz M U, Zhou X, Werner P, Parkin S S P, Pan F 2019 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **11** 6581
- [21] Nallagatla V R, Jung C U 2020 *Appl. Phys. Lett.* **117** 143503
- [22] Acharya S K, Nallagatla R V, Togibasa O, Lee B W, Liu C, Jung C U, Park B H, Park J Y, Cho Y, Kim D W, Jo J, Kwon D H, Kim M, Hwang C S, Chae S C 2016 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **8** 7902
- [23] Tian J, Wu H, Fan Z, Zhang Y, Pennycook S J, Zheng D, Tan Z, Guo H, Yu P, Lu X, Zhou G, Gao X, Liu J M 2019 *Adv. Mater.* **31** 1903679
- [24] Acharya S K, Jo J, Raveendra N V, Dash U, Kim M, Baik H, Lee S, Park B H, Lee J S, Chae S C, Hwang C S, Jung C U 2017 *Nanoscale* **9** 10502
- [25] Su R, Chen J, Zhao Y, Cheng W, Li Y, Wang X, Yan J, Miao X 2022 *Ceram. Int.* **48** 33115
- [26] Lyapunov N, Suen C H, Wong C M, Tang X, Ho Z L, Zhou K, Chen X X, Liu H M, Zhou X, Dai J Y 2021 *J. Adv. Dielectr.* **11** 2150004
- [27] Rao J, Fan Z, Hong L, Cheng S, Huang Q, Zhao J, Xiang X, Guo E J, Guo H, Hou Z, Chen Y, Lu X, Zhou G, Gao X, Liu J M 2021 *Mater. Today Phys.* **18** 110392
- [28] Das T, Nicholas J D, Qi Y 2017 *J. Mater. Chem. A* **5** 4493
- [29] Chen S, Zhao J, Jin Q, Lin Q, Lin S, Chen S, Yao H, Wang J, Fan Z, Guo E J, Guo H 2021 *China Phys. Mech. Astron.* **64** 287711
- [30] Kim S, Choi S H, Lee J, Lu W D 2014 *ACS Nano* **8** 10262
- [31] Chen Y Y, Goux L, Clima S, Govoreanu B, Degraev R, Kar G S, Fantini A, Groeseneken G, Wouters D J, Jurczak M 2013 *IEEE Trans. Electron Devices* **60** 1114
- [32] Lee M J, Lee C B, Lee D, Lee S R, Chang M, Hur J Y, Kim Y B, Kim C J, Seo D H, Seo S, Chung U I, Yoo I K, Kim K 2011 *Nat. Mater.* **10** 625
- [33] Gao L, Wang I T, Chen P Y, Vrudhula S, Seo J S, Cao Y, Hou T H, Yu S 2015 *Nanotechnology* **26** 455204
- [34] Baek I G, Lee M S, Seo S, Lee M J, Seo D H, Suh D S, Park J C, Park S O, Kim H S, Yoo I K, Chung U I, Moon J T 2004 *IEDM Technical Digest. IEEE International Electron Devices Meeting San Francisco, CA, USA, December 13-15, 2004* p587
- [35] Li Y, Fang P, Fan X, Pei Y 2020 *Semicond. Sci. Technol.* **35** 055004
- [36] Liu X, Sadaf S M, Son M, Shin J, Park J, Lee J, Park S, Hwang H 2011 *Nanotechnology* **22** 475702
- [37] Chien W C, Chen Y C, Lai E K, Yao Y D, Lin P, Horng S F, Gong J, Chou T H, Lin H M, Chang M N, Shih Y H, Hsieh K Y, Liu R, Lu C Y 2010 *IEEE Electron Device Lett.* **31** 126
- [38] Yoshida C, Tsunoda K, Noshiro H, Sugiyama Y 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 223510
- [39] Yang Y C, Pan F, Liu Q, Liu M, Zeng F 2009 *Nano Lett.* **9** 1636

- [40] Nili H, Walia S, Balendhran S, Strukov D B, Bhaskaran M, Sriram S 2014 *Adv. Funct. Mater.* **24** 6741
- [41] Liu P, Jia C, Zhang W 2022 *ACS Appl. Electron. Mater.* **4** 982
- [42] Ou X, Shuai Y, Luo W, Siles P F, Kögler R, Fiedler J, Reuther H, Zhou S, Hübner R, Facsko S, Helm M, Mikolajick T, Schmidt O G, Schmidt H 2013 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **5** 12764
- [43] Ilyas N, Wang J, Li C, Fu H, Li D, Jiang X, Gu D, Jiang Y, Li W 2022 *J. Mater. Sci. Technol.* **97** 254
- [44] Li S, Pam M E, Li Y, Chen L, Chien Y C, Fong X, Chi D, Ang K W 2022 *Adv. Mater.* **34** 2103376
- [45] Sokolov A, Ali M, Li H, Jeon Y R, Ko M J, Choi C 2021 *Adv. Electron. Mater.* **7** 2000866
- [46] Kim S M, Kim S, Ling L, Liu S E, Jin S, Jung Y M, Kim M, Park H H, Sangwan V K, Hersam M C, Lee H S 2022 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **14** 5673
- [47] Choi S, Jang S, Moon J H, Kim J C, Jeong H Y, Jang P, Lee K J, Wang G 2018 *NPG Asia Mater.* **10** 1097
- [48] Li Y, Chen S, Yu Z, Li S, Xiong Y, Pam M E, Zhang Y W, Ang K W 2022 *Adv. Mater.* **34** 2201488
- [49] Li C, Belkin D, Li Y, Yan P, Hu M, Ge N, Jiang H, Montgomery E, Lin P, Wang Z, Song W, Strachan J P, Barnell M, Wu Q, Williams R S, Yang J J, Xia Q 2018 *Nat. Commun.* **9** 2385
- [50] Wang Z, Wang W, Liu P, Liu G, Li J, Zhao J, Zhou Z, Wang J, Pei Y, Zhao Z, Li J, Wang L, Jian Z, Wang Y, Guo J, Yan X 2022 *Neuromorp. Comput.* **2** 754876
- [51] Sun K, Chen J, Yan X 2020 *Adv. Funct. Mater.* **31** 2006773

SPECIAL TOPIC — Novel physical properties of functional oxide thin films •
COVER ARTICLE

Perovskite-phase interfacial intercalated layer- induced performance enhancement in SrFeO_x-based memristors*

Chen Kai-Hui¹⁾²⁾ Fan Zhen^{1)2)†} Dong Shuai¹⁾ Li Wen-Jie¹⁾ Chen Yi-Hong¹⁾
Tian Guo¹⁾ Chen De-Yang¹⁾ Qin Ming-Hui¹⁾ Zeng Min¹⁾ Lu Xu-Bing¹⁾
Zhou Guo-Fu²⁾ Gao Xing-Sen¹⁾ Liu Jun-Ming³⁾

1) (*Institute for Advanced Materials, South China Academy of Advanced Optoelectronics, South China Normal University, Guangzhou 510006, China*)

2) (*Guangdong Provincial Key Laboratory of Optical Information Materials and Technology & National Center for International Research on Green Optoelectronics, South China Academy of Advanced Optoelectronics, South China Normal University, Guangzhou 510006, China*)

3) (*Laboratory of Solid State Microstructures and Innovation Center of Advanced Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

(Received 10 October 2022; revised manuscript received 2 December 2022)

Abstract

SrFeO_x (SFO) is a kind of material that can undergo a reversible topotactic phase transformation between an SrFeO_{2.5} brownmillerite (BM) phase and an SrFeO₃ perovskite (PV) phase. This phase transformation can cause drastic changes in physical properties such as electrical conductivity, while maintaining the lattice framework. This makes SFO a stable and reliable resistive switching (RS) material, which has many applications in fields like RS memory, logic operation and neuromorphic computing. Currently, in most of SFO-

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 92163210, U1932125, 52172143) and the Science and Technology Program of Guangzhou, China (Grant No. 202201000008).

† Corresponding author. E-mail: fanzhen@m.scnu.edu.cn

based memristors, a single BM-SFO layer is used as an RS functional layer, and the working principle is the electric field-induced formation and rupture of PV-SFO conductive filaments (CFs) in the BM-SFO matrix. Such devices typically exhibit abrupt RS behavior, i.e. an abrupt switching between high resistance state and low resistance state. Therefore, the application of these devices is limited to the binary information storage. For the emerging applications like neuromorphic computing, the BM-SFO single-layer memristors still face problems such as a small number of resistance states, large resistance fluctuation, and high nonlinearity under pulse writing. To solve these problems, a BM-SFO/PV-SFO double-layer memristor is designed in this work, in which the PV-SFO layer is an oxygen-rich interfacial intercalated layer, which can provide a large number of oxygen ions during the formation of CFs and withdraw these oxygen ions during the rupture of CFs. This allows the geometric size (e.g., diameter) of the CFs to be adjusted in a wide range, which is beneficial to obtaining continuously tunable, multiple resistance states. The RS behavior of the designed double-layer memristor is studied experimentally. Compared with the single-layer memristor, it exhibits good RS repeatability, small resistance fluctuation, small and narrowly distributed switching voltages. In addition, the double-layer memristor exhibits stable and gradual RS behavior, and hence it is used to emulate synaptic behaviors such as long-term potentiation and depression. A fully connected neural network (ANN) based on the double-layer memristor is simulated, and a recognition accuracy of 86.3% is obtained after online training on the ORHD dataset. Comparing with a single-layer memristor-based ANN, the recognition accuracy of the double-layer memristor-based one is improved by 69.3%. This study provides a new approach to modulating the performance of SFO-based memristors and demonstrates their great potential as artificial synaptic devices to be used in neuromorphic computing.

Keywords: SrFeO_x-based memristor, artificial synapse, neural network, interfacial intercalated layer

PACS: 73.40.-c, 73.50.-h, 73.61.-r, 84.35.+i

DOI: [10.7498/aps.72.20221934](https://doi.org/10.7498/aps.72.20221934)

钙钛矿相界面插层对 SrFeO_x 基忆阻器的性能提升

陈开辉 樊贞 董帅 李文杰 陈奕宏 田国 陈德杨 秦明辉 曾敏 陆旭兵 周国富 高兴森 刘俊明

Perovskite–phase interfacial intercalated layer–induced performance enhancement in SrFeO_x –based memristors

Chen Kai-Hui Fan Zhen Dong Shuai Li Wen-Jie Chen Yi-Hong Tian Guo Chen De-Yang Qin Ming-Hui Zeng Min Lu Xu-Bing Zhou Guo-Fu Gao Xing-Sen Liu Jun-Ming

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 097301 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20221934

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221934>

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

新型忆阻器神经形态电路的设计及其在条件反射行为中的应用

Design of novel memristor–based neuromorphic circuit and its application in classical conditioning

物理学报. 2019, 68(23): 238501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191023>

双层结构突触仿生忆阻器的时空信息传递及稳定性

Spatiotemporal signal processing and device stability based on bi–layer biomimetic memristor

物理学报. 2021, 70(17): 178504 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210274>

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>

基于水热法制备三氧化钼纳米片的人工突触器件

Artificial synapse based on MoO_3 nanosheets prepared by hydrothermal synthesis

物理学报. 2020, 69(23): 238501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200928>

基于忆阻器的脉冲神经网络硬件加速器架构设计

Memristor based spiking neural network accelerator architecture

物理学报. 2022, 71(14): 148401 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220098>

基于物理信息神经网络的光斑质心计算

Calculation of spot centroid based on physical informed neural networks

物理学报. 2022, 71(20): 200601 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220670>