ЧАСТОТНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ГИСТЕРЕЗИСА ДВИЖЕНИЯ ВАКАНСИЙ В ЗАКРЫТОМ МЕМРИСТОРЕ НА ОСНОВЕ ТОЧНО РЕШАЕМОЙ МОДЕЛИ УПРАВЛЯЕМОЙ НЕЛИНЕЙНОЙ ДИФФУЗИИ

И. В. Бойло^{*}, К. Л. Метлов^{**}

Донецкий физико-технический институт им. А. А. Галкина 283048, Донецк, Россия

> Поступила в редакцию 22 августа 2023 г., после переработки 1 августа 2024 г. Принята к публикации 1 августа 2024 г.

Рассмотрена частотная зависимость гистерезиса движения вакансий в закрытом с обеих сторон мемристоре под действием протекающего через мемристор периодического электрического тока. На основе точно решаемой нелинейной модели получено уравнение для петель гистерезиса при прохождении прямоугольных импульсов тока со скважностью 2. Оценена эффективность перемещения заряда вакансий током в сравнении с их свободной диффузией. Показано, что максимальная эффективность достигается при определенном, зависящем от амплитуды подаваемого тока, периоде переключений мемристора. Получены аналитические асимптотики этой зависимости и сопротивления мемристора в зависимости от амплитуды и периода пропускаемого через мемристор тока.

DOI: 10.31857/S0044451024120095

1. ВВЕДЕНИЕ

Мемристор, предложенный Леоном Чуа [1], — отдельный тип двухполюсных элементов электронных схем, сопротивление которого зависит от интеграла по времени прошедшего тока. Если через мемристор проходит зависящий от времени ток, изменение его сопротивления сопровождается гистерезисом. Другими словами, мемристор реализует функцию памяти. Эта простейшая аналоговая память оказывается удобной для реализации электронных синапсов в нейроморфных компьютерах [2–10], ячеек резистивной памяти с произвольным доступом [11–13], а также электронных устройств, которые позволяют объединить память и процессор [14].

Как и оригинальная модель мемристора [1], большинство точно решаемых моделей [12, 15–17] описывают эволюцию мемристора при помощи системы обыкновенных дифференциальных уравнений первого порядка по времени для нескольких (макроскопических) скалярных переменных состояния. При учете пространственной вариации переменных состояния (в обзоре [18] соответствующие модели предлагается называть распределенными) система уравнений дополняется уравнениями в частных производных (в общем случае нелинейными). Такое мезоскопическое моделирование мемристоров в настоящее время выполняется в основном численно [19–26].

Значительную часть этих подходов можно обобщить в виде стохастической модели со случайной внешней силой [27, 28], приводящей к уравнению Фоккера – Планка для пространственного распределения концентрации дефектов. В линейном случае это параболическое уравнение в частных производных сводится к уравнению диффузии, что позволяет достаточно точно описать гистерезисные свойства многих реальных устройств [18, 27, 28].

Тем не менее в мемристорах могут присутствовать и сильно нелинейные эффекты, связанные, как минимум, с тем, что локальная концентрация дефектов (подвижных вакансий, зародышей новой фазы) ограничена и не может превышать некоторой, являющейся свойством материала, величины. Эта фундаментальная нелинейность была исследована

^{*} E-mail: boylo@donfti.ru

^{**} E-mail: metlov@donfti.ru

нами ранее в рамках простой мезоскопической модели для миграции (под действием приложенного тока) заряженных вакансий в закрытом с обоих сторон (полу)проводнике, которая сводится к знаменитому уравнению нелинейной диффузии Бюргерса и допускает точное решение [29].

В данной работе рассмотрен одномерный мемристор на основе материала с подвижными заряженными вакансиями, закрытый с обеих сторон плоскими, непроницаемыми для вакансий, контактами. На основании полученного ранее точного решения исследуются гистерезисные петли такого мемристора, формирующиеся при подаче на него меандра (бесконечной периодической цепочки прямоугольных импульсов со скважностью 2). Рассчитана частотная зависимость этих петель и предложен критерий для определения оптимальной частоты переключений.

2. МОДЕЛЬ И ЭВОЛЮЦИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ВАКАНСИЙ

Рассмотрим материал с мобильными заряженными вакансиями (хотя дальнейшее рассмотрение в равной мере применимо к дрейфу любых других заряженных дефектов, в том числе и непосредственно к дрейфу ионов), занимающий пространство вдоль координатной оси x от x = 0 до x = d, т. е. однородную пленку толщины *d* между двумя плоскими контактами. Сами контакты будем считать непроницаемыми для вакансий (химически не активными). Исходя из предположения, что концентрация С мобильных вакансий ограничена сверху величиной C_{max} , удобно нормировать ее на эту величину: $c = C/C_{max}, 0 \le c \le 1$. Рассмотрев дрейф вакансий под действием электрического поля как функцию времени t с учетом уравнения непрерывности, для c можно получить [29] уравнение Бюргерса

$$\partial_{\tau}c + p(1-2c)\partial_{\xi}c = \partial_{\xi\xi}c, \qquad (1)$$

где введены безразмерные координата $\xi = x/d$, время $\tau = tD/d^2$, учитывающее коэффициент диффузии вакансий D, и параметр p = const, характеризующий силу внешнего воздействия. В случае, когда действующее на вакансии с зарядом q электрическое поле создано проходящим через рассматриваемый материал с удельным сопротивлением ρ_0 электрическим током I, величина

$$p = 2(d/a) \operatorname{sh}\left(aq\rho_0 I/k_B\Theta\right)$$

играет роль перенормированной безразмерной силы тока. Здесь Θ — абсолютная температура, k_B — постоянная Больцмана и $a \ll d$ — характерная длина единичного прыжка вакансии в процессе дрейфа (в первом порядке по a/d от величины a ничего не зависит). Непроницаемость границ выражается при этом условием [29]

$$pc(1-c) - \partial_{\xi}c\Big|_{x=0,d} = 0.$$
 (2)

Несмотря на то, что и само уравнение в частных производных (1), и граничное условие (2) являются нелинейными, используя преобразование Хопфа– Коула, можно получить точное решение этой краевой задачи [29]

$$c = \frac{\partial}{\partial\xi} \frac{1}{p} \log \left[P + p \, e^{-\tau p^2/4 + p\xi/2} \sum_{n=1}^{\infty} h_n e^{-\tau n^2 \pi^2} \sin n\pi\xi \right],\tag{3}$$

где

$$P = P(\xi; p, r) = \frac{e^p - e^{pr} - e^{p\xi} + e^{p(r+\xi)}}{e^p - 1}$$
$$r = \int_0^1 cd\xi = \text{const}$$

— полное количество подвижных вакансий в системе, а коэффициенты h_n определяются начальным распределением вакансий $c|_{\tau=0} = c_0(\xi)$

$$h_n = 2 \int_0^1 \frac{e^{pu_0(\xi)} - P}{p} e^{-p\xi/2} \sin(n\pi\xi) d\xi, \qquad (4)$$

где

$$u_0(\xi) = \int_0^{\xi} c_0(\xi) d\xi, \quad u_0(1) = r$$

С одной стороны, выражения (3) и (4) позволяют вычислить эволюцию произвольного начального распределения вакансий при заданном постоянном внешнем воздействии (токе) p = const. Этого достаточно, чтобы рассмотреть временную релаксацию электрического сопротивления такого мемристора, найти его сопротивления во «включенном» и «выключенном» состояниях, вычислить времена записи и удержания информации в нем [29]. С другой стороны, все без исключения приложения мемристоров основываются на их гистерезисных свойствах, проявляющихся при зависящей от времени внешней силе.

3. МЕМРИСТОР ПОД ПЕРИОДИЧЕСКИМ ВОЗДЕЙСТВИЕМ

Рассмотрим случай (часто исследуемый при численном моделировании), когда подаваемый на мемристор сигнал представляет собой бесконечную периодическую (с периодом T) цепочку прямоугольных импульсов со скважностью 2. Будем считать, что половину периода (продолжительностью T/2) через мемристор течет ток I, I > 0, другую половину — ток -I. Тогда эволюцию распределения вакансий можно рассчитать на основании решения (3) с положительной величиной p в первой половине периода и отрицательной во второй.

Движение вакансий под действием постоянного тока, протекающего через мемристор в течение половины периода, есть релаксация некоторого начального распределения вакансий к равновесному (для данной величины и полярности перенормированного тока p, заполнения мемристора r), которое от начального распределения не зависит. Математически, процесс релаксации выражается в виде (3) через коэффициенты разложения (4) начального распределения вакансий. Однако направление релаксации и коэффициенты разложения зависят от направления тока (знака p). Будем называть величины h_n (4) в первой половине периода коэффициентами разложения в прямом базисе, а во второй половине эти величины, вычисленные по выражению (4) с $p \rightarrow -p$, — коэффициентами разложения в обратном базисе. Тогда в процессе воздействия тока фиксированной амплитуды, периодически меняющего знак, мемристор будет половину периода эволюционировать (релаксировать) в прямом базисе, а половину в обратном. Конечное состояние первого полупериода будет начальным для второго полупериода. Переразлагая его в обратном базисе, можно рассчитать эволюцию во втором полупериоде. Затем процесс повторяется.

Бесконечно долгое периодическое воздействие на мемристор приводит к периодической эволюции распределения вакансий (хотя конечная по времени эволюция некоторого начального распределения под влиянием подобного осциллирующего воздействия выйдет на этот цикл не сразу). Периодичность означает, что коэффициенты h_n в начале периода можно найти из условия, что эволюционировавшее на протяжении T/2 распределение вакансий равно зеркально отраженному относительно $\xi = 1/2$ начальному распределению (см. Приложение):

$$h_n = \frac{2(-1)^n e^{pr-\frac{p}{2}}}{p} \int_0^1 \left(\overline{P} - \frac{1}{P + p e^{-\frac{p^2(T/2)}{4} + \frac{px}{2}} \sum_{n=1}^\infty h_n e^{-n^2 \pi^2(T/2)} \sin n\pi\xi} \right) e^{p\xi/2} \sin(n\pi\xi) d\xi,$$
(5)

где $\overline{P} = P(\xi; -p, r)$. В случае бесконечно большого периода $T \to \infty$ коэффициенты h_n соответствуют процессу переключения между равновесными предельными распределениями вакансий, для них есть явные и аналитические выражения (см. формулу (3.2) из работы [29]). Но, кроме этого предельного цикла, интерес представляет и зависимость процесса переключения от частоты, анализу которой и посвящена данная работа.

К сожалению, в общем случае решить уравнение (5) аналитически не представляется возможным. Но это можно достаточно эффективно сделать численно, если учесть, что члены суммы в знаменателе (5) мажорируются быстро затухающей (при T > 0) экспонентой. Тогда, обрезая на некотором слагаемом (скажем, под номером k), получим систему алгебраических уравнений (5) для первых h_n , n = 1, 2, ..., k. Используя эту обрезанную сумму, можно вычислить и остальные h_n , n > k. Причем для $T \gg 1$ приемлемую точность дает уже k = 1. При меньших T требуются бо́льшие значения k, но все равно вычисление оказывается достаточно эффективным. Этот алгоритм реализован в виде программы для Wolfram Mathematica.

Уравнение (5) можно решить аналитически в пределе $pT \ll 1$ для «оптимального» (r = 1/2) заполнения мемристора, соответствующего максимальной разности его предельных сопротивлений [29]. Тогда получим

$$h_n = \frac{4(1 - (-1)^n)p}{(1 + e^{-\frac{T}{8}(p^2 + 4n^2\pi^2)})n\pi(p^2 + 4n^2\pi^2)}.$$
 (6)

Соответствующие распределения вакансий построены на приведенном ниже рис. 2 пунктирными линиями. Для малых pT они очень точно (визуально практически неотличимо) ложатся на сплошные кривые, полученные численно.



Рис. 1. Петля гистерезиса мемристора (зависимость среднего смещения вакансий из центра от прошедшего через мемристор электрического заряда Q) под периодическим внешним воздействием для p = 10, T = 0.25; облака точек показывают возможные реализации распределения вакансий в двух предельных состояниях; на вставках изображены нормированные зависимости тока I и заряда Q от времени и (схематически) та же петля гистерезиса в координатах ток-напряжение (I-V и $I-\lg |V|$)

Обычно при исследовании переключения мемристора под периодическим воздействием рассматривают петли гистерезиса в координатах ток-напряжение (*I–V*). Для рассматриваемой здесь модели мемристора эти петли схематически показаны на вставках к рис. 1. В координатах *I-V* они имеют типичный вид повернутой восьмерки (на правой вставке), а в логарифмических координатах І-lg |V| вид крыльев летящей чайки (на левой вставке). Качественно подобные петли наблюдаются во многих экспериментах, но такое представление петель не очень удобно для детального исследования гистерезисных свойств мемристора под воздействием периодической цепочки прямоугольных импульсов тока. При таком воздействии на мемристор ток меняется скачком и вся кинетика переключения в координатах *I-V* изображается в виде двух вертикальных линий, соответствующих максимальной и минимальной величине тока. Движение вдоль наклонных прямых (либо контуров крыла чайки) на петле гистерезиса происходит мгновенно в момент смены знака проходящего через мемристор тока. Реальные мемристоры всегда имеют некоторую емкость, из-за чего импульсы

проходящего через них тока не являются идеально прямоугольными. Это приводит к скруглению углов петли гистерезиса на диаграмме I-V. Тем не менее в данной работе емкость мемристора не учитывается и считается равной нулю.

С другой стороны (и это является центральной идеей, стоящей за выделением мемристоров в отдельный класс электрических элементов [1]), управляющим параметром мемристора является не величина проходящего через него тока, а полный прошедший на данный момент времени электрический заряд. Очевидным кандидатом на роль переменной состояния является сопротивление мемристора, которое мы вычислим в разд. 4. Но сопротивление лишь отражает распределение вакансий, которое и определяет текущее неравновесное состояние мемристора. Нужно также учесть наличие множества микроскопических механизмов формирования сопротивления мемристора, которые к тому же могут быть задействованы одновременно. Эти механизмы связаны с изменением сопротивления материала как функции локальной концентрации вакансий либо с изменением сопротивления интерфейсов мемристора при изменении концентрации вакансий вблизи них. Чтобы абстрагироваться от механизмов формирования сопротивления и сфокусировать наше рассмотрение на непосредственной причине гистерезисных свойств мемристора, выберем в качестве переменной состояния среднее смещение вакансий, которое удобно отсчитывать от центра мемристора: $\langle \xi \rangle - 1/2$. Именно в этих координатах (заряд– смещение) изображены петли гистерезиса на рис. 1 и рис. 2.

Еще удобнее использовать безразмерную величину перемещенного заряда

$$\Omega = r(\langle \xi \rangle - 1/2), \tag{7}$$

которая получается умножением среднего смещения на полное количество вакансий r. Простое смещение для r < 1/2 всегда больше, чем смещение для r > 1/2, поскольку во втором случае значительное количество вакансий не перемещается, что уменьшает среднюю величину смещения. Величина Ω является экстенсивной и потому соответствует ожидаемой симметрии между мемристорами с числом заполнения r и 1 - r. Ожидаемой, поскольку, вообще говоря, процессы перемещения вакансий и примесных атомов (отсутствие которых является вакансией) имеют одинаковую кинетику с той лишь незначительной разницей, что вакансии и примесные атомы имеют заряды противоположного знака и перемещаются под действием одного и того же тока в



Рис. 2. Характерные распределения вакансий при t = 0, T/10, 2T/10, 3T/10, 4T/10, T/2 (сверху вниз вдоль левой стороны графика, либо снизу вверх вдоль правой) и петли гистерезиса (на вставках) для r = 1/2 и разных значений p и T, приведенных на графиках. Петля для p = 10 и T = 0.25 показана на рис. 1

разные стороны. Наличие этой симметрии видно на вставке к рис. 3, где гистерезисные кривые для $r = \gamma$ и $r = 1 - \gamma$ совпадают для всех $0 < \gamma < 1$. Смещение заряда для r = 1/2 при этом максимально.

Работа мемристора проходит в двух режимах: перемещение вакансий электрическим током (запись информации) и их свободная диффузия (хранение информации). Для оценки эффективности перемещения заряда в процессе записи можно сравнить его со средним перемещением вакансий в процессе свободной диффузии за то же характерное время T. Последнее в рассматриваемом одномерном случае (и в используемой нормировке) равно $\sqrt{2T}$. Перемещение Ω , как оно определено формулой (7), соответствует четверти периода. Поэтому искомая, характеризующая относительное перемещение заряда величина равна $4\Omega/\sqrt{2T}$. Ее зависимость от периода переключений T при r = 1/2 построена на рис. 3.

Зависимость на рис. З для всех p > 0 содержит максимум. Для малых периодов ток не успевает повлиять на распределение вакансий, а для больших периодов распределение вакансий под действием тока выходит на стационарный режим и дальнейшее воздействие не увеличивает времени жизни записанной информации. Положение максимума T_{max} смещается в сторону малых периодов при увеличении нормированной силы тока p. Его величина при этом растет. Это значит, что увеличение скорости работы мемристора, для сохранения его пиковой эффективности, также требует увеличения силы записывающего тока. Наличие максимума на частотной зависимости нормированного заряда, связанное с «противоборством» стирающих информацию тепловых флуктуаций и записывающих ее периодических импульсов тока может навести на мысль о подобии этого эффекта и недавно обнаруженного в мемристорах явления стохастического резонанса [30]. Но все же нужно отметить, что в нашем случае числитель и знаменатель отношения $4\Omega/\sqrt{2T}$, вообще говоря, относятся к разным экспериментам с разными временными зависимостями проходящего через мемристор тока: в одном из них информация циклически записывается, во втором она самопроизвольно стирается под действием тепловых флуктуаций в отсутствие тока. Эти два процесса (запись и хранение информации) являются основными при работе ячеек памяти на мемристорах.

Для величины периода переключений T_{max} , соответствующей наибольшей эффективности, можно сделать две аналитические оценки, показанные на рис. 3 пунктирными линиями. Во-первых, эта величина ограничена сверху $T_{max} < \sqrt{17/90}$, что дает достаточно точную оценку для T_{max} при $p \ll 1$. Существование этого конечного предела связано с тем, что движение вакансий при малых р приближается к свободной диффузии. С другой стороны, при больших $p \gg 1$ асимптотически $T_{max} \simeq 2\sqrt{2}/p$. Поскольку основные свойства мемристоров проявляются именно при больших записывающих токах I, последняя оценка устанавливает связь между силой записывающего тока в мемристоре на свободных вакансиях и характерным временем его переключений. В размерных единицах (секундах) в пределе $a \to 0$ это время равно

$$\tau_{max} = \sqrt{2}dk_B\Theta/DIq\rho_0$$



Рис. 3. Нормированное на корень из среднеквадратичного смещения при простой диффузии среднее перемещение вакансий за период T для разных T, p и r = 1/2, штриховой линией показано положение максимума на этой зависимости, пунктирными линиями — асимптотики к штриховой линии; на вставке приведена зависимость петель гистерезиса при p = 10, T = 0.25 от коэффициента заполнения r, где вертикальная координата пропорциональна полному перемещенному вакансиями заряду Ω

Отсюда следует, что уменьшение толщины мемристора также позволяет увеличить скорость переключений при сохранении относительной эффективности. Но нужно отметить, что абсолютная величина времени удержания записанной информации, которая при больших токах растет как функция *d* квадратично [29], так же важна, как и относительная эффективность их перемещения. Обе эти аналитические асимптотики могут оказаться полезными при проектировании мемристоров с наперед заданными свойствами.

Приведенное выше выражение для τ_{max} содержит параметры материала, которые не всегда точно известны априори. Можно получить более удобное для сравнения с экспериментом выражение в терминах непосредственно измеряемых величин. Для этого отметим, что эволюция состояния мемристора есть релаксационный процесс. Причем из очень общих термодинамических соображений известно, что релаксация из состояния, близкого к равновесию, обычно протекает по экспоненциальному закону. Таким образом, при приближении к предельному состоянию сопротивление мемристора зависит от времени как

$$R(\tau) \propto e^{-\tau/\tau_R},$$

что для рассматриваемой нами модели непосредственно подтверждается прямым расчетом [29]. В той же работе получено и аналитическое выражение для времени релаксации, которое не зависит от коэффициента заполнения r или начального распределения вакансий в мемристоре и в пределе $a \to 0$ имеет вид

$$\tau_R \approx \frac{d^2}{4D(\pi^2 + (dq\rho_0 I)^2/(k_B\Theta)^2)}$$

По своему физическому смыслу эта величина определяет зависящее от величины внешнего тока характерное время записи информации $\tau_W = \tau_R$. И эта же величина, если положить в ней I = 0, дает характерное время самопроизвольного стирания записанной информации, когда ток через мемристор не идет:

$$\tau_E = \tau_R|_{I=0} = \frac{d^2}{4\pi^2 D}$$

Нужно отметить, что для этих характерных времен можно ввести разные определения, которые будут отличаться методологическим (зависящим от методики) числовым множителем; мы в дальнейшем анализе будем пользоваться приведенными выше определениями, характеризующими релаксацию мемристора при приближении его к конечному равновесному состоянию. В любом случае эти характерные времена являются непосредственно измеримыми в эксперименте величинами. Считая τ_W и τ_E известными, можно исключить из приведенного выше выражения для τ_{max} все остальные параметры:

$$\tau_{max} = \frac{4\sqrt{2}\pi\tau_E}{\sqrt{\tau_E/\tau_W - 1}} \approx 4\sqrt{2}\pi\sqrt{\tau_E\tau_W}.$$
 (8)

При этом из определения τ_R следует, что всегда $\tau_W < \tau_E$ и выражение под корнем положительно, а последнее приближенное равенство соответствует приближению $\tau_W \ll \tau_E$ или (наиболее интересному для приложений) случаю больших токов $p \gg 1$. Численный множитель в этом выражении зависит от методики определения характерных времен, и для других определений он может быть другим.

Иными словами, можно сказать, что наиболее эффективное переключение мемристора достигается, когда период его переключений равен (с некоторым постоянным числовым коэффициентом) среднему геометрическому от характерных времен записи и стирания информации в нем. При много больших периодах пропускаемый через мемристор ток уже практически не перемещает вакансий, а значит, не изменяет состояния мемристора, т. е. не приводит ни к чему, кроме омических потерь. При много меньших периодах состояние мемристора не успевает измениться достаточно сильно, чтобы надежно сохранить записанную информацию.

4. СОПРОТИВЛЕНИЕ МЕМРИСТОРА

Микроскопически, состояние мемристора в рассмотренной модели определяется текущей концентрацией подвижных вакансий, $c(\xi, \tau)$. Макроскопически же, удобной переменной состояния является величина смещения заряда вакансий Ω , которая непосредственно характеризует отклонение распределения вакансий в нем от равновесного с $\Omega = 0$. Изменение Ω в зависимости от прошедшего через мемристор полного заряда электронов (являющимся управляющим параметром мемристора [1]) обсуждается в предыдущем разделе.

С другой стороны, величина Ω не всегда доступна для прямых измерений. Как правило, вместо нее эксперимент фиксирует полное сопротивление мемристора, которое мы сейчас и вычислим. Напомним, что в нашей работе рассматриваются мемристоры с непроницаемыми для вакансий контактами. Полное число вакансий внутри мемристора, таким образом, сохраняется. Именно такой тип мемристоров нам кажется наиболее практически важным. Хотя в случае открытых (например, с одной стороны) мемристоров можно добиться большей амплитуды изменения сопротивления за цикл, такие устройства могут быть чувствительны к характеристикам окружающей их внешней среды (например, к концентрации кислорода в ней, если мемристоры основаны на движении кислородных вакансий). За пределами нашего аналитического рассмотрения останутся многослойные мемристоры, в которых некоторые слои могут играть роль аккумуляторов вакансий. Они также допускают рассмотрение на основе уравнений (для каждого слоя) нелинейной диффузии, но их аналитическое решение будет гораздо более громоздким со множеством дополнительных параметров.

Примем феноменологический подход и предположим, что удельное сопротивление материала ρ (слабо) зависит от концентрации подвижных вакансий *с*. Представим эту зависимость в виде степенного ряда:

$$\rho = \rho_0' + \rho_1 c + \rho_2 c^2 + \dots$$

Поскольку полное количество вакансий внутри мемристора не изменяется, член первого порядка вносит лишь постоянный вклад в полное сопротивление мемристора и его можно объединить с нулевым членом $\rho_0 = \rho'_0 + \rho_1 r$. Члены более высоких порядков способны привести к изменению сопротивления в процессе перераспределения вакансий, но зеркально-симметричные распределения (относительно центра мемристора), возникающие в предельных точках его цикла (когда вакансии концентрируются вблизи одного либо другого контакта), будут соответствовать одинаковому значению полного сопротивления. Это значит, что зависимость удельного сопротивления материала от концентрации вакансий, если и оказывает влияние на работу мемристора, на разнице сопротивлений во «включенном» и «выключенном» состоянии мемристора не отражается.

Таким образом, в первом порядке по *с* полное сопротивление замкнутого мемристора будет зависеть лишь от вклада его интерфейсов [29]:

$$\rho = \rho_0 + \frac{\kappa_{1,0} + \kappa_{1,1}c}{d}\delta(\xi) + \frac{\kappa_{2,0} + \kappa_{2,1}c}{d}\delta(\xi - 1) + O(c^2), \quad (9)$$

где $\kappa_{i,0}$ и $\kappa_{i,1}$ — коэффициенты разложения поверхностного сопротивления интерфейсов i = 1, 2 по степеням c, а дельта-функция Дирака $\delta(x)$ предполагается левосторонней (этот математический прием выносит ее формально за границы области движения вакансий). Тогда в первом порядке сопротивление мемристора имеет вид

где

$$R'_{0} = (d\rho_{0} + \kappa_{1,0} + \kappa_{2,0})/A,$$
$$R_{1} = \kappa_{1,1}/A, \quad R_{2} = \kappa_{2,1}/A,$$

 $R = R_0' + R_1 c(0,\tau) + R_2 c(1,\tau),$

A — площадь поверхности контакта (сечение мемристора). Перегруппировкой членов можно выразить сопротивление через безразмерный параметр σ' как

$$R = R_0 + R_1 \sigma'$$

$$\sigma' = c(0, \tau) + \alpha c(1, \tau) - r(1 + \alpha)$$
(10)

$$R_0 = R'_0 + R_1 r(1 + \alpha),$$

где введен безразмерный коэффициент асимметрии сопротивления интерфейсов $\alpha = R_2/R_1$. Удобство в том, что величина σ' при переключении мемристора меняется симметрично относительно точки Q = 0,



Рис. 4. Амплитуда изменения сопротивления $-\sigma|_{\tau=T/2}$ в процессе переключения мемристора с половинным (r = 1/2) заполнением: сплошные линии — точный расчет, штриховые — асимптотика (12); на вставке показаны петли гистерезиса сопротивления $-\sigma'$, зависящие от коэффициента асимметрии контактов α (его значения для каждой петли подписаны числами слева), и предельная петля (более толстая линия) $\sigma = \sigma'|_{\alpha=0}$

 $\sigma' = 0$. Величина R_0 при этом задает постоянную составляющую сопротивления, а R_1 пропорциональна абсолютной амплитуде его изменений.

Далее мы рассмотрим наиболее интересный случай половинного заполнения r = 1/2 мемристора, когда перемещение заряда вакансий и изменение сопротивления мемристора [29] максимальны. Тогда выполняется тождество $c(1, \tau) = 1 - c(0, \tau)$, что позволяет исключить параметр α , рассмотрев перенормированное безразмерное сопротивление мемристора при r = 1/2:

$$\sigma = \sigma'/(1-\alpha) = c(0,\tau) - 1/2 = \sigma'|_{\alpha=0}.$$
 (11)

На вставке к рис. 4 показаны петли гистерезиса в координатах $\sigma'-Q$ для разных значений α , которые после перенормировки в координатах $\sigma-Q$ переходят в универсальную петлю (11), не зависящую от α . Аналогичное перемасштабирование кривых релаксации сопротивления в универсальную кривую было получено в работе [31] на основе модели VEOVM [20] и подтверждено там экспериментально (см. рис. 4 в работе [31]) для мемристора на основе поликристаллического La_{0.325}Pr_{0.300}Ca_{0.375}MnO₃ (LPCMO) с серебряными контактами. Оно, по-видимому, является универсальным свойством как открытых, так и закрытых с обеих сторон мемристоров.

Когда интерфейсы абсолютно идентичны $(\alpha = 1)$, изменение сопротивления закрытого мемристора (с половинным заполнением) отсутствует и $\sigma' = 0$, но в пределе $\alpha \to 1$ перенормированная петля в координатах σ -Q все равно остается неизменной. И это при том, что общий наклон петли при переходе от $\alpha < 1$ к $\alpha > 1$ меняется на противоположный, что соответствует смене знака σ' .

Амплитуду петли гистерезиса сопротивления $\sigma|_{\tau=T/2}$ можно вычислить непосредственно по формулам (3), (10), (11). Но можно получить и приближенное явное выражение, исходя из асимптотики (6) при r = 1/2:

$$\sigma|_{\tau=T/2} \simeq -4p \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\operatorname{th}\left(\frac{T}{16} \left(p^2 + 4\pi^2 (2k+1)\right)\right)}{p^2 + 4\pi^2 (2k+1)}.$$
 (12)

Это выражение правильно воспроизводит амплитуду сопротивления как в петлях с малым периодом $T \ll 1$, так и в петлях с большим $T \gg 1$, когда сопротивление выходит на насыщение:

$$\sigma|_{\tau=T/2,T\gg1} \simeq -(1/2) \operatorname{th}(p/4)$$

Заметная погрешность появляется лишь при промежуточных значениях p и T. Амплитуда петли и ее асимптотика (12) построены на рис. 4 как функция периода колебаний проходящего через мемристор тока для разных значений p.

Приведенное выше феноменологическое описание сопротивления мемристора не зависит напрямую от конкретного материала и конкретного механизма формирования электрического сопротивления на контактах. Его основным предположением является возможность представить удельное сопротивление (поверхностное или объемное) в виде степенного ряда по с, откуда, с учетом сохранения количества вакансий в закрытом с обеих сторон мемристоре, в низшем порядке по степеням с получается выражение (10). Входящие в него параметры R_0, R_1 и α описывают свойства материала мемристора и механизм формирования электрического сопротивления на его (асимметричных) контактах. Эти параметры можно определить из независимых измерений или подгонкой.

В случае $R_0 \gg R_1$ влиянием изменения электрического сопротивления, связанного с перераспределением ионов, на электрическое поле, движущее этими ионами, можно пренебречь. Простой способ

учесть этот эффект без значительного усложнения модели — использовать определение

$$p = 2(d/a) \operatorname{sh} \left(aq\rho I / k_B \Theta \right)$$

в качестве уравнения самосогласования, подставив в него величину $\rho = \rho_0 + \rho_1 \sigma'$, которая уже будет зависеть от состояния мемристора. Можно ожидать, что это приведет к дополнительному скосу петель гистерезиса, но детальное исследование этого эффекта осталось за рамками данной работы. Также мы не учитывали емкость мемристора и считали, что импульсы тока являются идеально прямоугольными. Тем не менее мы точно учли нелинейные гистерезисные эффекты, связанные с ограниченностью концентрации подвижных вакансий, которые способны проявить себя в самых разных конкретных реализациях закрытых с обоих сторон мемристоров на базе самых разных материалов и с различными типами контактов.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы рассмотрели эволюцию точно решаемой нелинейной модели мемристора с подвижными заряженными вакансиями под действием периодического (состоящего из прямоугольных импульсов со скважностью 2) внешнего тока. Получено и решено (в общем случае численно) уравнение для петель гистерезиса. В частном случае, когда амплитуда и период колебаний внешнего тока малы, дана аналитическая асимптотика решения этого уравнения. Показано, что наибольшая эффективность перемещения заряда вакансий достигается, когда мемристор заполнен ими ровно наполовину от максимально возможного количества. Введена мера эффективности перемещения вакансий в сравнении с процессом их свободной диффузии и исследована ее зависимость от периода внешнего тока. Эта зависимость содержит максимум, соответствующий наибольшему отношению величины вынужденного перемещения заряда вакансий над его свободной диффузией за то же время. Получены аналитические асимптотики периода внешнего тока, соответствующего максимуму эффективности, для малых и больших его амплитуд, а также асимптотика амплитуды петли гистерезиса сопротивления. Для большой амплитуды внешнего тока оптимальный период переключения мемристора связан с временем записи и временем хранения информации в нем простым соотношением (8).

ПРИЛОЖЕНИЕ. ЗЕРКАЛЬНО-СИММЕТРИЧНОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ВАКАНСИЙ

Эволюция распределения вакансий под действием периодической с периодом T и скважностью 2 последовательности знакопеременных прямоугольных импульсов внешнего тока приводит к тому, что распределения вакансий на временах t и t + T/2 (со сдвигом на половину периода) являются зеркальносимметричными относительно точки $\xi = 1/2$. Два таких распределения, $c(\xi)$ и $\tilde{c}(\xi)$, связаны соотношением $c(\xi) = \tilde{c}(1-\xi)$, а соответствующие им первообразные функции $u(\xi) = r - \tilde{u}(1-\xi)$, где $\tilde{c}(\xi) = \tilde{u}'(\xi)$, $\tilde{u}(0) = 0$, $\tilde{u}(1) = r$. По определению (4) коэффициенты разложения $u(\xi)$ равны

$$u_n = \frac{2}{p} \int_0^1 \left(e^{p(r - \tilde{u}(1-\xi))} - P(\xi; p, r) \right) e^{-p\xi/2} \sin(n\pi\xi) d\xi.$$
(13)

После замены переменных $y = 1 - \xi$, использования тождеств $P(1 - \xi; p, r) = e^{pr}P(\xi; -p, r)$ и $\sin n\pi(1 - y) = (-1)^n \sin n\pi y$ получим соотношение между коэффициентами разложения зеркальносимметричных функций:

$$u_n = e^{pr - p/2} (-1)^n \left(\widetilde{u}_n |_{p \to -p} \right).$$
 (14)

Другими словами, коэффициенты разложения распределения вакансий прямо пропорциональны коэффициентам разложения их зеркальносимметричного распределения в обратном $(p \rightarrow -p)$ базисе. Из этого соотношения непосредственно следует выражение (5).

ЛИТЕРАТУРА

- 1. L. Chua, IEEE Trans. Circuit Theory 18, 507 (1971).
- M. Prezioso, F. Merrikh-Bayat, B. D. Hoskins et al., Nature 521, 61 (2015).
- M. Prezioso, F. Merrikh-Bayat, B. D. Hoskins et al., Sci. Rep. 6, 21331 (2016).
- R. Berdan, E. Vasilaki, A. Khiat et al., Sci. Rep. 6, 18639 (2016).
- V. Saxena, X. Wu, and K. Zhu, in *Proc. IEEE* International Symposium on Circuits and Systems, ISCAS 2018, 27-30 May 2018, Florence, Italy, DOI: 10.1109/ISCAS.2018.8351766.
- F. Liu and C. Liu, in 2018 55th ACM/ESDA/IEEE Design Automation Conference (DAC), DOI: 10.1109/dac.2018.8465849.

- T. Ahmed, S. Walia, E. L. H. Mayes et al., Sci. Rep. 9, 15404 (2019).
- S. Deswal, A. Kumar, and A. Kumar, AIP Adv. 9, 095022 (2019).
- 9. G. Yuan, X. Ma, C. Ding et al., in 2019 IEEE/ACM International Symposium on Low Power Electronics and Design (ISLPED), DOI: 10.1109/islped.2019.8824944.
- N. Wu, A. Vincent, D. Strukov et al., Memristor hardware-friendly reinforcement learning, arXiv:cs.ET/2001.06930.
- R. Waser and A. Masakazu, Nat. Mater. 6, 833 (2007).
- D. B. Strukov, G. S. Snider, D. R. Stewart et al., Nature 453, 80 (2008).
- 13. A. Sawa, Mater. Today 11, 28 (2008).
- 14. D. Ielmini and H. S. P. Wong, Nat. Electron. 1, 333 (2018).
- 15. L. Chua and S. M. Kang, Proc. IEEE 64, 209 (1976).
- 16. Y. N. Joglekar and S. J. Wolf, Eur. J. Phys. 30, 661 (2009).
- 17. E. Linn, A. Siemon, R. Waser et al., IEEE Trans. Circuits Syst. I 61, 2402 (2014).
- J. B. Roldán, E. Miranda, D. Maldonado et al., Adv. Intell. Syst. 5, 2200338 (2023).
- 19. D. B. Strukov and R. S. Williams, Appl. Phys. A 94, 515 (2009).

- 20. M. J. Rozenberg, M. J. Sánchez, R. Weht et al., Phys. Rev. B 81, 115101 (2010).
- N. Ghenzi, M. J. Sánchez, F. Gomez-Marlasca et al., J. Appl. Phys. 107, 093719 (2010).
- 22. S. Larentis, F. Nardi, S. Balatti et al., IEEE Trans. Electron Devices 59, 2468 (2012).
- 23. S. Kim, S. Choi, and W. Lu, ACS Nano 8, 2369 (2014).
- 24. A. Marchewka, R. Waser, and S. Menzel, in 2016 International Conference on Simulation of Semiconductor Processes and Devices (SISPAD), p. 145, DOI: 10.1109/sispad.2016.7605168.
- 25. A. Marchewka, B. Roesgen, K. Skaja et al., Adv. Electron. Mater. 2, 1500233 (2016).
- 26. I. V. Boylo, Phys. Stat. Sol. (b) 254, 1600698 (2017).
- 27. N. V. Agudov, A. V. Safonov, A. V. Krichigin et al., J. Stat. Mech. 2020, 024003 (2020).
- N. Agudov, A. Dubkov, A. Safonov et al., Chaos Solitons Fractals 150, 111131 (2021).
- 29. I. V. Boylo and K. L. Metlov, Roy. Soc. Open Sci. 8, 210677 (2021).
- A. Mikhaylov, D. Guseinov, A. Belov et al., Chaos Solitons Fractals 144, 110723 (2021).
- 31. S. Tang, F. Tesler, F. G. Marlasca et al., Phys. Rev. X 6, 011028 (2016).