



# PhD Tézisfüzet

Ultrakis méretű, chipen kialakított  
rezisztív kapcsoló memóriák fejlesztése és vizsgálata

Török Tímea Nóra

**Témavezető: Prof. Halbritter András**  
Fizika Tanszék  
Fizikai Intézet  
Budapesti Műszaki és  
Gazdaságtudományi Egyetem

**Ipari szakértő: Dr. Volk János**  
Nanoérzékelők Laboratórium  
Műszaki Fizikai és  
Anyagtudományi Intézet  
Energia tudományi Kutatóközpont

BME  
2024

# Bevezetés

Az információs technológiák fejlődése elérte azt a szintet, amikor a von Neumann-architektúrára épülő klasszikus számítógépek sok esetben már nem elegendők a gyorsan növekvő információmennyiség feldolgozásához. Az adatfeldolgozás sebességének fő korlátja a számítási- és memóriefunkciókat ellátó, fizikailag elkülönülő egységek közötti adatátvitel korlátozott sebessége. A hatékony információfeldolgozásra történő törekvések újszerű szoftveres megoldások, biológiai ihletésű algoritmusok és neurális hálózatok elterjedéséhez vezettek, az adattudomány fejlődésével együtt. Ezen megközelítések alkalmazása azonban rendkívül energia- és időigényes a szokásos architektúrára épülő rendszerekkel, így az újszerű szoftvermegoldások és algoritmusok hatékony alkalmazásához teljesen új hardverarchitektúrára is szükség van. Ezért a logikai- és memóriefunkciókat együttesen biztosító, új építőelemek fejlesztése az utóbbi években dinamikusan fejlődő, egyre szerteágazóbb tudományterületté vált [IRDS, 2021; IRDS, 2022].

Ezen, újonnan megjelenő eszközök egy csoportját képezik a rezisztív kapcsoló memóriák (más néven memrisztorok): fém-szigetelő-fém nanoszerkezetek, amelyek vezetőképessége az eszköz elektródaira adott elektromos jelekkel változtatható [Yang, 2013]. A vezetőképesség változása egy rezisztív kapcsoló memóriában lehet illékony, vagy nem-illékony tulajdonságú. Utóbbi esetben többszintű (analóg) programozás valósítható meg megfelelően megválasztott idejű és amplitúdójú elektromos jelekkel, miközben a vezetőképesség alacsony jelszinteken állandó marad. Így a nem-illékony rezisztív kapcsoló memóriák analóg memóriával rendelkeznek, ami ígéretes platformot biztosít például mesterséges neurális hálózatok nagy súlymátrixainak hardver-szintű kódolására. Egy ilyen memrisztorhálózattal a vektor-mátrix szorzási műveletek – amelyek egyébként sok, elemi számítási lépést igényelnek egy tranzisztor-alapú architektúrán – egyetlen lépésben elvégezhetők. Ezek a memrisztor-alapú mesterséges szinapszisok nagyságrendekkel gyorsabb és energiatakarékosabb működést tesznek lehetővé mesterséges neurális hálózatok esetén (ANN, artificial neural networks) [Xia, 2019]. A memrisztorok neuromorfikus tulajdonságaik révén biológiailag inspirált algoritmusok számára is szolgálhatnak valódi fizikai építőelemként. Egyszerű áramkörök építésén keresztül az ilyen eszközök felhasználhatók neurodinamikus oszcillátorok vagy mesterséges neuronok létrehozására, amelyek oszcillációs neurális hálózatok (ONN, oscillatory neural networks) vagy tüskés neurális hálózatok (SNN, spiking neural networks) építőelemeiként használhatóak [Kumar, 2022].

A memrisztív eszközökben tapasztalt rezisztív kapcsolási jelenségek oka az eszköz belső, aktív tartományának szerkezetében bekövetkező reverzibilis változás. Sok memrisztor esetében egy jól vezető struktúra, ú.n. *filamentum* alakul ki önszerveződő folyamatok révén, ami az eszköz vezetőképességének megváltozásához vezet. A rezisztív kapcsolat során kialakuló filamentumok fizikai természete, valamint a kapcsolási folyamatok dinamikáját magyarázó mikroszkopikus – vagy nanoskálájú – folyamatok érdekes témák sok nyitott kérdéssel, a különféle memrisztorokban jelenlévő kapcsolási mechanizmusok változatosságának köszönhetően.

## Célkitűzések

A rezisztív kapcsolási mechanizmusok finom részleteinek feltárása rendkívül fontos az eszközök fejlesztése szempontjából. A különböző anyagrendszerekben a memrisztív tulajdonságokat alakító fizikai mechanizmusok alapos megértése nélkül lehetetlen megbízható eszközöket kifejleszteni, amelyek megfelelnek a technológia kereskedelmi forgalomba hozatalához szükséges valamennyi szigorú követelménynek.

A disszertációmban bemutatott tanulmányok célja kettős: az egyik cél új memrisztív eszközök kifejlesztése különféle anyagokból, és ugyancsak fontos cél, hogy betekintést nyerjünk ezek kapcsolási mechanizmusába, ami pontos, kísérleti úton igazolt fizikai modellek alkalmazását teszi lehetővé. Támaszkodva ezen széles spektrumú vizsgálatokra, dolgoztam néhány alkalmazási lehetőségen is, például neuromorfikus számításokat megvalósító memrisztív áramkörök kapcsán.

## Vizsgálati módszerek

Doktori tanulmányaim részeként lehetőségem nyílt részt venni különböző eszközfejlesztési folyamatok minden szakaszában. Ezekben a projekteknél chipen kialakított, ultra-kicsi rezisztív kapcsoló memóriák fejlesztésével foglalkoztam,  $Ta_2O_5$ ,  $Nb_2O_5$ ,  $SiO_x$  és  $VO_2$  anyagokból. A Műszaki Fizikai és Anyagtudományi Intézetben végzett munkám részeként elektronsugár-litográfiával, vékonyréteg-leválasztással és marási technikákkal hoztam létre memrisztív eszközöket. Ezen eszközök elektromos karakterizációját a Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetemen végeztem, fontos visszajelzést biztosítva az Intézetben folyó eszközfejlesztési projektekhez.

A memrisztív eszközök atomi szintű folyamatainak tanulmányozására szupravezető subgap spektroszkópiás módszert alkalmaztam, amely lehetővé teszi atomi méretű filamentumok roncsolásmentes vizsgálatát például átmeneti fém-oxid alapú memrisztorokban. A technika a szupravezető energiarés tartományában rögzített  $I(V)$  karakterisztikák illesztésére épül. Ezen subgap görbék nemlineáris jellege alapján feltárhatók a memrisztorok kvantumtranszport-tulajdonságai. Ezen vizsgálatokhoz  $Nb_2O_5$  és  $Ta_2O_5$  STM pontkontaktus memrisztorokat alacsony hőmérsékletű mérőrendszerben tanulmányoztam, amelyhez elektromos szűrőköroket optimalizáltam a subgap karakterisztikák megfelelő energiafelbontású rögzítéséhez. A mérési eljárást törőkontaktus technikával létrehozott, atomi méretű Ta és Nb vezetéseken validáltam.

Kidolgoztam egy módszert, amely a  $SiO_x$  memrisztorok bekapcsolási idejének statisztikai elemzésén alapul. Ezzel a technikával meghatározható, hogy a kristályosodási folyamat magképződési (nukleációs) része, vagy a kristályos térfogat növekedése hajtja-e az eszköz dinamikáját. A kapcsolási idők szimulálására egy lassan változó, korrelált magképződési energiagátat alapul vevő modellt készítettem, a kísérleti úton tapasztalt bekapcsolási idő-eloszlások magyarázatára.

Tanulmányoztam saját gyártású vanádium-oxid eszközök alkalmazhatóságát neurodinamikus tulajdonsággal bíró áramkörökben. Egy memrisztor-alapú mesterséges auditív érzékelőegység koncepciójának megvalósíthatóságát vizsgáltam, amelynek célja egy teljesen beültethető cochleáris implantátumban való orvosi alkalmazás. Az áramkör egy mechanikus rezgéseket érzékelő MEMS rezgőnyelvből és egy neurodinamikus  $VO_2$  oszcillátor

csatolásából áll. Vizsgáltam a MEMS rezgőnyelvek gerjesztési frekvencia-válaszát, valamint a VO<sub>2</sub> oszcillátorok tulajdonságait az auditív érzékelőegység összeállításához. Az csatolt áramkör tanulmányozásához a Műszaki Fizikai és Anyagtudományi Intézet munkatársainak segítségével olyan mintatartót terveztem, amely képes a biológiailag reális, ~ 10 nm-es tartományban mechanikai gerjesztést biztosítani.

## Új tudományos eredmények

1. Különböző anyagok felhasználásával chipen kialakított memrisztorokat fejlesztettem és állítottam elő, elektronsugár-litográfiával és vékonyréteg-leválasztási módszerekkel. Vertikális, keresztaszias OxRAM eszközöket fejlesztettem Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> [O1] és Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> [O2] anyagokból. Kidolgoztam egy módszert ezen eszközök kontrollált, feszültségimpulzusokkal történő elektroformázására. Elvégeztem  $I(V)$  karakterizálásukat is, amely feltárta az eszközök stabil, nem-illékony tulajdonságait. Szobahőmérsékleten és alacsony hőmérsékleten ( $T = 1, 3$  K) vizsgáltam Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> keresztaszias eszközeimet, és összehasonlítottam működésüket memrisztív Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> STM pontkontaktusokkal, hasonló rezisztív kapcsolási tulajdonságokat tárva fel mindkét esetben [O2]. Szintén hozzájárultam VO<sub>2</sub> nanorés eszközök kifejlesztéséhez, amelyek illékony rezisztív kapcsolási jellemzőkkel rendelkeznek. Különböző résméretű eszközöket állítottam elő és karakterizáltam, megfigyelve egy általános tendenciát, miszerint a kisebb résméretű eszközöknél a bekapcsolási küszöbfeszültség értéke lecsökken [O3]. Megmutattam a VO<sub>2</sub> nanorés eszközökből épített áramkörök hangolható neurodinamikus viselkedését. Optimalizáltam egy VO<sub>2</sub> oszcillátor áramkört, hogy egy tüskék előállítására alkalmas egységet biztosítsak egy autonóm neurális detektor áramkör számára [O4]. Ezek az eszközfejlesztések sokoldalú, chipen kialakított rezisztív kapcsoló építőelemeket biztosítottak kutatócsoportunk számára [O1–O4].
2. A grafén/SiO<sub>x</sub>/grafén nanorés fázisváltó memrisztorok bekapcsolási folyamatának tanulmányozása során megfigyeltem, hogy a bekapcsolási idők statisztikai eloszlása a mérési ciklusszám függvényében változásokat mutat. Azt tapasztaltam, hogy rövidebb,  $n_{\text{corr}} \approx 200$  (az adatok tipikus korrelációs paramétere) kapcsolási ciklusszám esetén a logaritmikus bekapcsolásiidő-hisztogramok jól illeszthetőek az exponenciális eloszlás sűrűségfüggvényével, ami nukleációs folyamatra utal, állandó nukleációs energiagátattal. Hosszabb adatsorok esetén azonban a bekapcsolási idő hisztogramjai lognormális sűrűségfüggvényt követnek, amelynek szórása nagyobb, mint az exponenciális sűrűségfüggvény egyetemes logaritmikus szórása ( $\sigma_{\log(\tau)}^{\text{exponential}} = 0.56$ ). Pt/SiO<sub>x</sub>/Pt eszközök hasonlóképp végzett vizsgálata megerősítette, hogy a hatás a SiO<sub>x</sub> aktív tartományban történő magképződésből ered, és kizárja a kristálynövekedés által vezérelt bekapcsolási folyamatot, amely alapvetően eltérő bekapcsolásiidő-statisztikát eredményezne. Megfigyeltem továbbá a  $\tau_{\text{set}}$  és a  $R_{\text{OFF}}$  mennyiségek korrelációját, ami az OFF állapot nanoszerkezetének ciklusonkénti változásának tulajdonítható. Ezen összefüggést hasznosítva megmutattam, hogy mindkét mennyiség hangolható a korrelációs ciklusszámon belül ( $n_{\text{corr}} \approx 200$ ), a kikapcsoló feszültségimpulzus amplitúdójának megfelelő beállítása által. [O5]

3. Alacsony hőmérsékletű ( $T = 1,4$  K) kísérleteket végeztem Nb(vékonyréteg)/Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Nb(tű) STM pontkontaktus eszközökön, amelyekkel demonstráltam a rezisztív kapcsolás működését kriogén hőmérsékleten. Szupravezető subgap spektroszkópiás méréseket alkalmaztam az aktív térfogatban lévő vezető nanoszálak  $\tau_i$  transzmissziós sajátértékeinek meghatározására. Ezekhez a mérésekhez saját tervezésű szűrőáramkört építettem, hogy biztosítsam a subgap spektrumok megfelelő energiafelbontását, és a  $\tau_i$  transzmissziós sajátértékeket a többszörös Andrejev-reflexiók elméletére támaszkodó illesztési eljárással határoztam meg. Vizsgálataim közvetlen kísérleti bizonyítékot szolgáltatnak arra, hogy a vezetőképesség kvantumának közelében működtetett Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> memriszorok ON állapotaiban egyetlen atom átmérőjű, egyetlen magas transzparenciájú vezetési csatornával rendelkező filamentumok jönnek létre. Ez a megfigyelés egyértelműen kizárja alternatív kontaktus-elrendezések lehetőségét, amelyek ugyanazt a vezetőképességet biztosítanák alagútátmenettel rendelkező szélesebb filamentumokban [O6].
4. Nanoskálájú Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> rezisztív kapcsoló filamentumok kvantumtranszport-tulajdonságait vizsgáltam STM pontkontaktus eszközökben. Vizsgálataim a  $\approx 3 - 10 G_0$  vezetőképesség-tartományra koncentráltak, ahol a szupravezető subgap  $I(V)$  karakterisztikák lényeges információt szolgáltatnak a számos nyitott vezetési csatornával rendelkező kontaktusok transzmisszió-eloszlásáról. Ez utóbbi feltárható ésszerű transzmissziós sűrűségfüggvények illesztése által. Az elemzés feltárta a legkeskenyebb keresztmetszetüknél valóban atomi méretű, 3 – 8 Ta atomból álló filamentumok képződését, kimutatva azt is, hogy az átmérő a rezisztív kapcsolás folyamata során változatlan marad. A kapcsolást az oxigén vakanciák vagy tantál kationok filamentumokon belüli átrendeződése irányítja, és a kikapcsolás folyamata a filamentum legszűkebb keresztmetszeténél egy potenciálgát kialakulását eredményezi, ami csökkenti a nyitott vezetési csatornák transzmisszióját. Ezek az eredmények egyértelmű különbséget mutatnak a mechanikusan elvékonyított tiszta Ta atomi kontaktusok kvantumtranszport-tulajdonságaitól. Utóbbi esetben a vezetőképesség csökkenése a csökkenő kontaktus-átmérővel áll összefüggésben, míg az átlagos transzmisszió állandó marad [O2].
5. Vizsgáltam a VO<sub>2</sub> oszcillátor-áramkör alkalmazási lehetőségeit egy auditív érzékelőegységben. Az oszcillátort egy piezoelektromos MEMS rezgőnyelvhez csatoltam, amely a mechanikai rezgések frekvenciaszelektív érzékeléséért felelős. A valós biológiai körülmények néhány fontos aspektusát reprodukáló méréseket végeztem, az auditív érzékelőegység cochleáris implantátumokban való alkalmazását célozva. Kísérleteim azt mutatják, hogy az auditív érzékelőegység biológiailag reális,  $\sim 10$  nm-es gerjesztési amplitúdók (stimulus) hatására képes tüskés áramkimenetet kibocsátani. Azt is kimutattam, hogy a stimulus amplitúdója kódolható a tüskék frekvenciájában, és a VO<sub>2</sub> oszcillátor-komponens passzív áramköri elemeinek megfelelő kiválasztásával a tüskék frekvenciája az idegrendszer által igényelt tartományba hangolható. Kiegészítve az oszcillátort további passzív áramköri elemekkel megmutattam, hogy az unipoláris áramkimeneti tüskék biológiailag motivált bipoláris feszültség-hullámformává alakíthatók. Kísérleteim azt mutatják, hogy az auditív

érzékelőegység több fontos előfeltételnek is megfelel a cochleáris implantátumokban való alkalmazáshoz.

## Az eredmények hasznosítása

A fenti eredmények hasznosításának fontos aspektusa a standard félvezetőgyártással kompatibilis – azaz nagy volumenű termelésre is alkalmas – mintakészítési eljárások kidolgozása volt a korábbi, STM pontkontaktus technikával megvalósított egyedi memrisztív átmenetek helyett. Emellett, a korábban egyedileg tesztelt, chipen kialakított rezisztív kapcsoló eszközöket sikerült komplexebb neuromorfikus áramkörökbe ágyazni, fontos lépéseket téve a saját készítésű memrisztív építőelemek valós célokra optimalizált alkalmazási lehetőségei felé.

## A tézispontokhoz kapcsolódó publikációk

- [O1] B. Sánta, Z. Balogh, L. Pósa, D. Krisztián, T. N. Török, D. Molnár, C. Sinkó, R. Hauert, M. Csontos, and A. Halbritter. *Noise Tailoring in Memristive Filaments*. ACS Applied Materials & Interfaces, **13**, 7453 (2021).
- [O2] T. N. Török, P. Makk, Z. Balogh, M. Csontos, and A. Halbritter. *Quantum Transport Properties of Nanosized Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Resistive Switches: Variable Transmission Atomic Synapses for Neuromorphic Electronics*. ACS Applied Nano Materials, **6**, 21340–21349 (2023).
- [O3] L. Pósa, P. Hornung, T. N. Török, S. W. Schmid, S. Arjmandabasi, G. Molnár, Z. Baji, G. Dražić, A. Halbritter, and J. Volk. *Interplay of Thermal and Electronic Effects in the Mott Transition of Nanosized VO<sub>2</sub> Phase Change Memory Devices*. ACS Applied Nano Materials, **6**, 9137 (2023).
- [O4] D. Molnár, T. N. Török, R. Kövecses, L. Pósa, P. Balázs, G. Molnár, N. J. Olalla, J. Leuthold, J. Volk, M. Csontos, and A. Halbritter. *Autonomous neural information processing by a dynamical memristor circuit* (2023). Available at: <https://arxiv.org/abs/2307.13320>.
- [O5] T. N. Török\*, J. G. Fehérvári\*, G. Mészáros, L. Pósa, and A. Halbritter. *Tunable, Nucleation-Driven Stochasticity in Nanoscale Silicon Oxide Resistive Switching Memory Devices*. ACS Applied Nano Materials, **5**, 6691 (2022).
- [O6] T. N. Török, M. Csontos, P. Makk, and A. Halbritter. *Breaking the Quantum PIN Code of Atomic Synapses*. Nano Letters, **20**, 1192 (2020).

---

\* Egyenlő hozzájárulás.

## Irodalmi hivatkozások listája

- [IRDS, 2022] IEEE. *International Roadmap for Devices and Systems*. <https://irds.ieee.org/editions/2022/irds%E2%84%A2-2022-beyond-cmos-and-emerging-research-materials> (2022).
- [IRDS, 2021] IEEE. *International Roadmap for Devices and Systems*. <https://irds.ieee.org/editions/2021/beyond-cmos> (2021).
- [Kumar, 2022] S. Kumar, X. Wang, J. P. Strachan, Y. Yang, and W. D. Lu. *Dynamical memristors for higher-complexity neuromorphic computing*. *Nature Reviews Materials*, **7**, 575 (2022).
- [Xia, 2019] Q. Xia and J. J. Yang. *Memristive crossbar arrays for brain-inspired computing*. *Nature Materials*, **18**, 309 (2019).
- [Yang, 2013] J. J. Yang, D. B. Strukov, and D. R. Stewart. *Memristive devices for computing*. *Nature Nanotechnology*, **8**, 13 (2013).