arXiv:2301.03352v1 [cs.ET] 9 Jan 2023

通过器件微型化增强忆阻存储器，实现神经形态计算

预印本

A. S. Goossens [1,2,*], M. Ahmadi [1,2], D. Gupta [1,2], I. Bhaduri [1,2], B. J. Kooi [1,2], 以及 T. Banerjee [1,2,*]

[1]格罗宁根认知系统与材料中心，格罗宁根大学，荷兰格罗宁根 [2]泽尼克先进材料研究所，格罗宁根大学，荷兰格罗宁根[*]{a.s.goossens,t.banerjee}@rug.nl

2023年1月

摘要

忆阻器的面积占用是基于材料的神经形态计算和大规模架构集成中的关键考量因素。目前研究最广泛的忆阻器件，其电子输运由细丝介导，这给其在架构实现中的可扩展性带来了挑战。本文提出了一种有力的替代型忆阻器件，并证明缩小面积可增强忆阻存储窗口，同时保持模拟行为，这与预期相反。我们将器件设计直接集成于半导体 Nb-$SrTiO_3$ 上，从而能够利用边缘处的电场效应，提升小尺寸器件的动态范围。我们通过扫描透射电子显微镜研究不同电阻态下开关的微观特性，为这些发现提供了依据；研究揭示了一层界面层，其物理范围会受到外加电场的影响。Nb-$SrTiO_3$ 忆阻器在缩小尺寸的同时能够满足硬件和软件要求，并显著增强忆阻功能，因此成为超越互补金属氧化物半导体、用于非冯·诺依曼计算的有力候选者。

关键词 界面型忆阻器、面积缩放、超越互补金属氧化物半导体、神经形态计算、扫描透射电子显微镜（STEM）

1 引言

人工智能和物联网等应用需求的不断增长，使得现有计算架构 [1]在大数据存储与处理方面面临严峻挑战。目前采用的冯·诺依曼架构使用互补金属氧化物半导体（CMOS）硬件，受存储吞吐量瓶颈影响，传输速度有限 [2, 3, 4] ，且能效低下、可扩展性有限 [4, 5, 6]。摆脱CMOS技术，转向存算一体芯片，能够缓解上述部分问题，但这要求我们从根本上重新思考计算的方方面面 [7]。为此迈出的第一步，是寻找具有适宜物理性质的新型材料和器件。阻变器件，即忆阻器，便是其中一类，其电阻可在多个电阻态之间切换。在不同离子材料中均有相关报道；根据开关机制，它们可分为两类：一类是在两个电极之间通过材料体相实现开关，另一类是界面型开关，发生在电极面积下方的局部区域[8]。它们能够将存储与计算集于一处，并表现出数字计算所不具备的特性，因此对新型计算方法具有重要意义。人脑能够以极低的功耗稳健地处理海量数据，因此它成为启发超越CMOS计算发展的灵感来源，也就不足为奇。由于大脑依赖庞大的网络，将忆阻器件微型化是开发大规模神经形态系统的一项重要研究方向。

对于这类材料驱动的研究，在力求集成忆阻器等存内计算器件的非常规计算架构中，面积占用是首要考量因素。针对非易失性传统细丝器件，研究人员已开展大量研究。在此类新型架构中应用这些器件所面临的挑战，除需要进行不利的电成形过程外，还包括其开关耐久性 [9],以及实现可辨识模拟电阻态的能力。具有两个以上稳定状态的忆阻器件还能大幅提升集成密度，因为每个器件都能以模拟方式存储多个数据位。

在价态变化忆阻器中，开关源于细丝。器件面积较大时可观察到这种行为，但器件缩小时，这种行为便会消失；此时传导由单根纳米级细丝介导，导致两种电阻态之间发生突变 [10]。此外，随着器件尺寸缩小，焦耳热对细丝的影响也值得重视；焦耳热会导致开关电压分布范围变宽，并使耐久性下降。器件稳定性和耐久性方面的这些局限，以及由此带来的工作功耗增加，是细丝型器件成功应用于大规模架构的主要障碍。

忆阻器件有望集成到大规模架构中，而要实现这一点，它们应具备较大的存储窗口、较高的耐久性和较低的变异性 [11]。在此，面积开关机制是一个有力的竞争方案。该机制占主导地位的一种模型系统，是在高功函数金属界面处形成的 Nb 掺杂钛酸锶 $_3$ （Nb:STO）肖特基接触。人们普遍认为，在这类材料系统中，负责开关的并非器件本体，而是界面附近的区域。关于所提出机制的更详细讨论见补充信息第 S3 节。

Nb:STO 与传统架构中广泛使用的硅等传统半导体不同，其介电常数相对较大（300），且强烈依赖于电场。这一特性拓展了功能设计的参数空间：可利用电场调节与忆阻器件设计相关的势垒高度和宽度。我们此前已证明，此类肖特基接触能够构成稳健的忆阻器，呈现非线性输运和连续的电导调制 [12], ，其行为还可用幂律描述，并能成功用于实现学习算法 [13]。然而，若要将基于Nb:STO的忆阻器用作超越互补金属氧化物半导体的非冯·诺依曼计算架构的硬件元件，重点应放在确立其在器件微型化条件下的忆阻性能上；此前尚未在此类半导体平台上对此进行验证。在本研究中，我们证明，Nb:STO上的钴肖特基接触忆阻器件即使缩小至 1 μm，模拟忆阻存储窗口仍会增大，这与预期相反。离子缺陷是忆阻行为的核心，因此通常预期会出现以下两种情况之一。若机制均匀地作用于整个面积，则电流密度将随器件面积变化，使高阻态（HRS）和低阻态（LRS）下的器件电阻均随电极尺寸变化，但二者之比与面积无关。另一种情况是，由于离子缺陷不足，电阻窗口在器件缩小后会大幅减小，甚至消失。然而，我们观察到，随着器件面积减小，存储窗口反而增大，且器件间变化极小；这一发现出乎意料。

为了解开关的微观本质，我们对初始样品以及分别施加正电压（置位）或负电压（复位）的样品进行了扫描透射电子显微镜（STEM）分析。利用集成微分相位衬度（iDPC），我们对重金属原子柱旁的氧原子柱进行了成像。

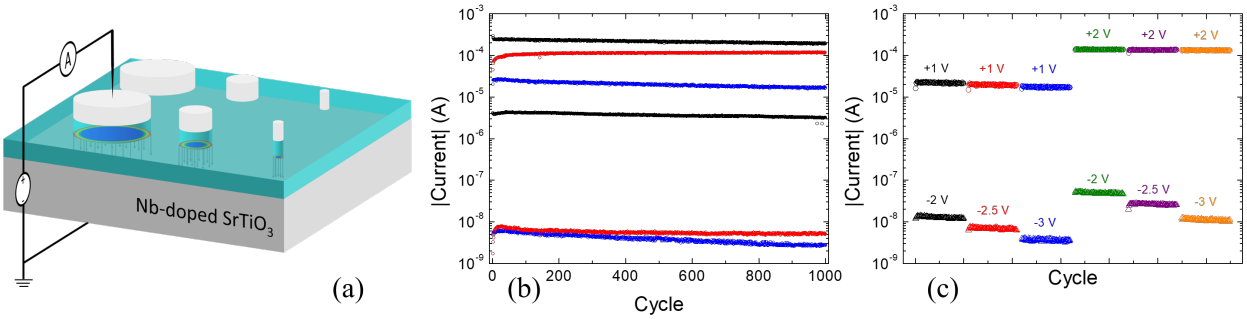

图 1：**状态稳定性和多级忆阻操作**。**a** 在 Nb 掺杂的 $SrTiO_3$, 上制备的器件示意图及电气连接。黑线表示作用于各个面积的总体电场变化。界面处的场强也以颜色渐变表示，显示中央区域（蓝色）的电场最弱，周边（红色）的电场最强。**b** 器件尺寸分别为 100 μm（黑色）、 10 μm（蓝色）和 1 μm（红色）时，在 +0.3 V 下读取的电流。**c** 在置位电压为 +1 V（黑色、红色和蓝色）或 +2 V（绿色、紫色和橙色），并分别以 -2 V（黑色和绿色）、-2.5 V（红色和紫色）或 -3 V （蓝色和橙色）作为复位电压进行开关后，在 0.3 V 下读取的电流。每种组合重复了 100 多个循环。

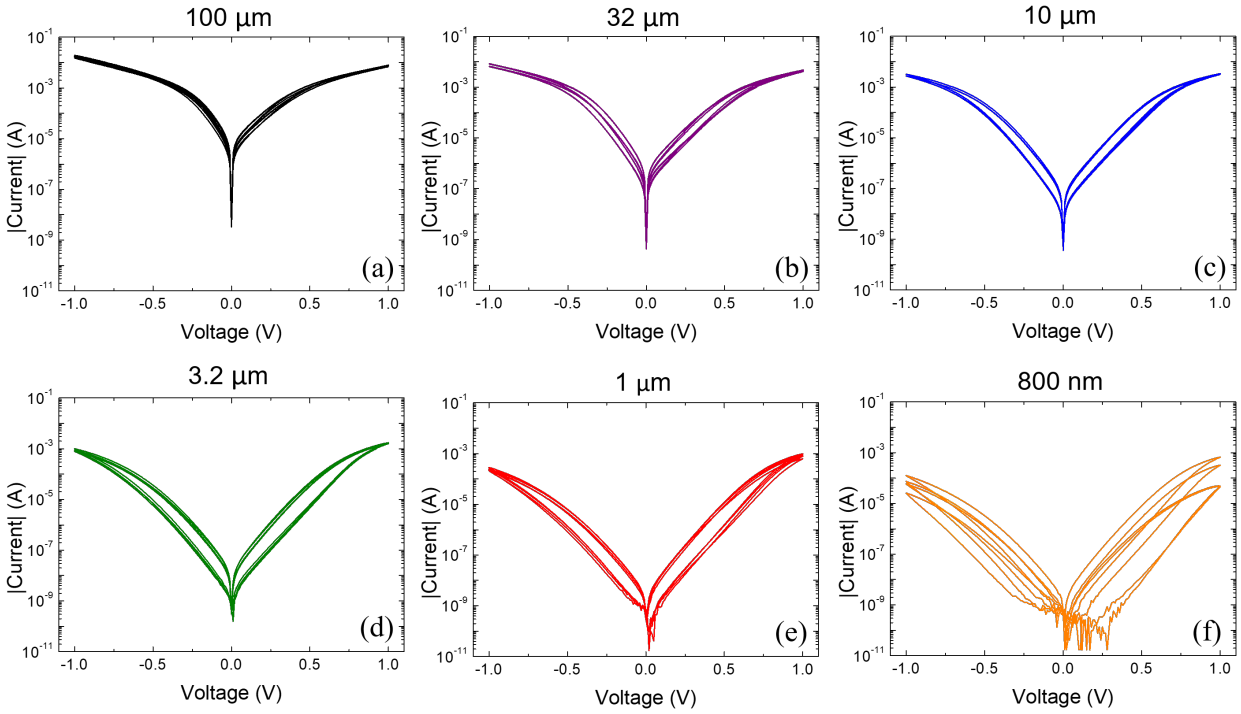

图 2：**初始态忆阻器件的表征**。初始器件的电学特性。所有测量的限流电流均固定为 100 mA。图**a-f**展示了每种面积下四个器件的结果。

初始样品显示，界面附近存在一层既不具有衬底的钙钛矿结构，也不具有Co电极的结构。对界面施加偏压会导致氧空位迁移，这是控制电阻态的关键因素。这些新发现通过一个描述介电材料中俘获与去俘获动力学的数学模型得以整合，并将实验结果与有效陷阱密度联系起来。令人惊讶的是，结尺寸越小，有效陷阱密度越大；这表明陷阱密度增加是电阻比升高的原因，而这种增加归因于器件边缘导致的电场分布不均匀。

这些直接集成在半导体平台上的忆阻器件展现出多态模拟开关特性；随着器件尺寸缩小，存储窗口显著增大，同时即使在最小尺寸的器件中，仍具有高耐久性和低器件间与循环间变异。它们能够同时满足非常规计算对硬件和软件的要求，使 Nb:STO 忆阻器成为超越CMOS的物理计算领域极具竞争力的材料。

2 结果

2.1 电学表征

图 1a 展示了用于电学测量的器件结构示意图。在半导体 Nb:STO 单晶衬底上制备了由不同尺寸圆形Co电极组成的阵列。衬底底部用作器件的背面接触电极。顶部电极采用两步电子束光刻工艺进行图案化，并使用氧化铝作为绝缘层来界定接触区域并防止电子串扰。

制备完成后，我们进行了小范围电压扫描，以表征芯片上每个器件的初始态。径向尺寸从 100 µm 到 800 nm 的器件结果如图 2 所示，每次扫描均遵循从 0 V 到 +1 V、再到 -1 V 并返回 0 V 的电压序列。我们展示了每种面积下的四个器件，绘于图 2a-f 中。
不同器件在相同面积下的电流大小直至 1 µm 均无显著差异，这表明器件间变异极小。确认这一点很重要，因为这说明电阻比仅受器件面积影响，并排除了器件间变异的影响。800 nm 器件的变异程度较大；这可能是由于制备工艺造成其面积和边缘存在微小差异，而非材料本身的固有特性或器件易失效所致。电流

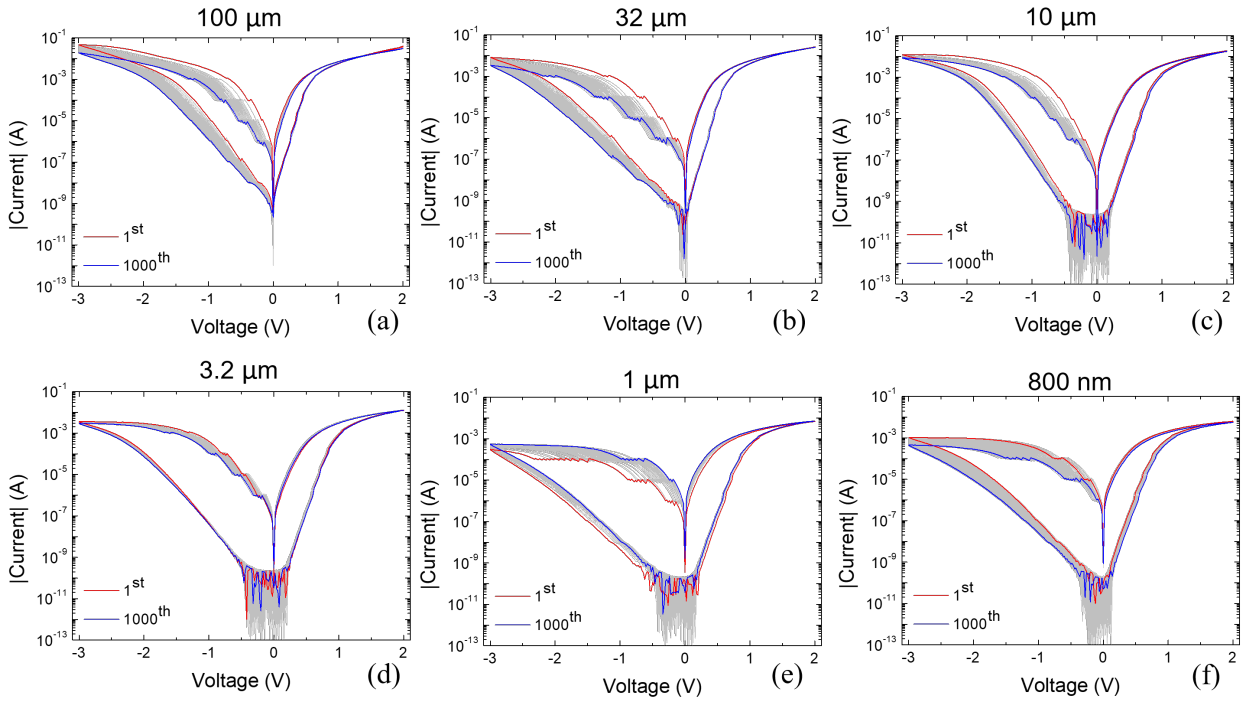

图 3：**电阻比、循环耐久性和状态稳定性**。**a-f** 展示了器件尺寸从 100 μm 缩小至 800 nm 时，从 +2 V 扫描至 -3 V 再至 +2 V 的 1000 次连续电流-电压扫描，扫描速率为 1.52 Vs^{-1}。从置位电压 +2 V 开始，每个器件均处于低阻态，由上方分支表示；达到 -3 V 的 RESET 电压并反向扫描后，器件切换至高阻态（由下方分支表示）。

在初始态下，低偏置电压时的电流密度未见显著差异，这证实整个器件面积均参与电荷传输（补充信息图 S1）。对于所有器件，电流均逐渐增大，并且从初始态开始表现出轻微的滞后效应，表明无需进行成形步骤。

图 3a-f 展示了这些器件的 1000 次连续电流-电压（I-V）扫描。从置位电压为 +2 V 开始，每个器件均处于低阻态，由上方分支表示。达到 -3 V 的 RESET 电压并反向扫描后，器件切换至高阻态（由下方分支表示）。在所有器件面积下，置位和复位操作均保持连续，表明器件尺寸缩小时，电阻开关仍保留其模拟特性。循环耐久性测试进行了超过 10^5 次开关循环，期间未发生器件失效，表明其耐久性达到 $>10^5$。在低偏置电压下，高阻态电流大致随面积变化，而低阻态电流与面积的相关性较弱。因此，在正向和反向偏压下，器件面积减小时电阻窗口均会增大。图 1b 和补充信息图 S2 分别展示了低读取电压 0.3 V 下的电流和电流密度。在低读电压下，循环间变化极小，器件能够在清晰可区分的态之间实现可重复开关，且器件性能未出现退化。这也证实了这些器件在缩小尺寸后可实现低功耗运行，这对忆阻器运行至关重要。如补充信息图 S3 所示，器件间变化在器件尺寸缩小至 1 μm 时仍然较低。800 nm 器件的电阻比变化较大（图 S4），将在后文讨论。

置位和复位转变是渐进的，且高度可调。为展示这一点，对一个 1 μm 器件施加电压扫描，使其在不同的正电压（置位）和负电压（复位）之间变化。图 1c 显示，在低至 +0.3 V 的读取电压下，可获得范围广泛的稳定状态。宽广的动态范围与大量不同的可寻址状态相结合，确保了器件的可靠性并提升了存储能力。在所示的 100 个循环中，每种状态的电流值分布都较窄，进一步印证了开关过程的稳定性。

2.2 扫描透射电子显微镜

使用扫描透射电子显微镜对肖特基界面进行了显微研究。图4展示了处于

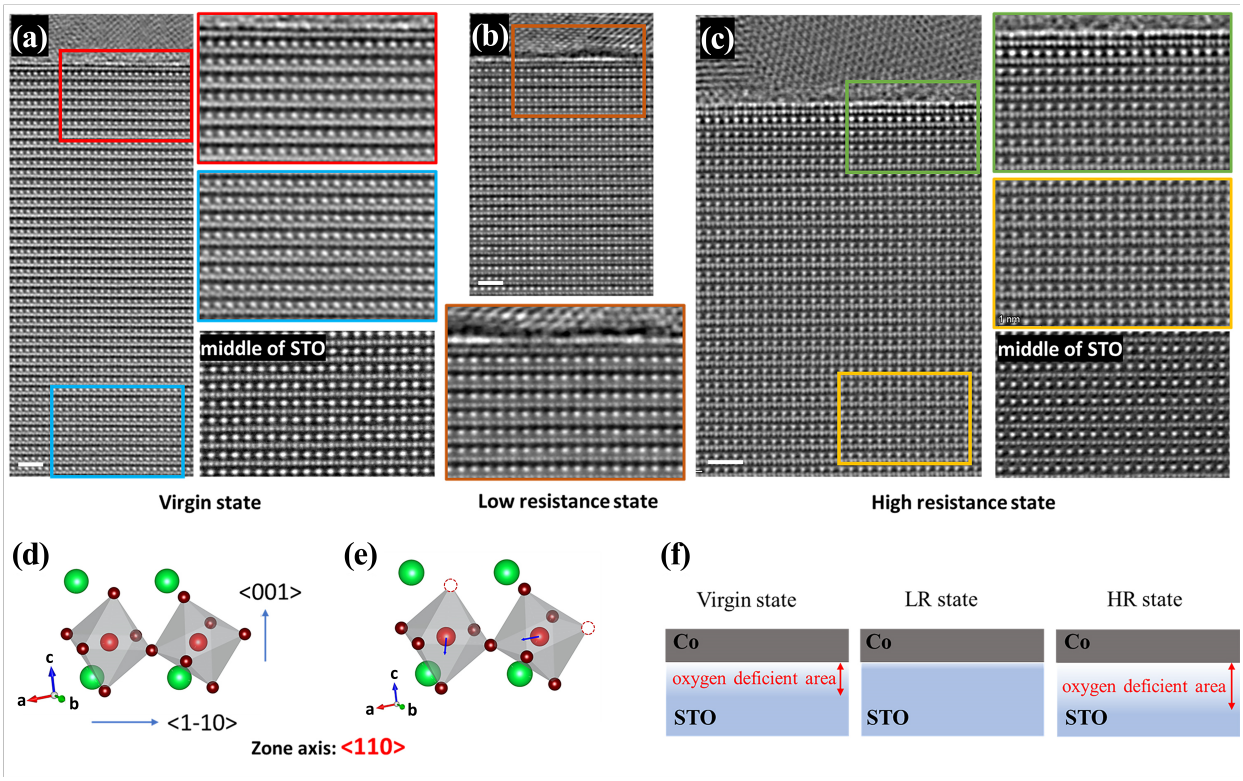

图4：**利用扫描透射电子显微镜观察氧空位迁移**。Co/Nb:STO 样品的积分差分相位衬度扫描透射电子显微镜图像，分别展示**a** 初始（未施加偏压）状态、**b** 低阻态和（**c** 高阻态下界面附近和远离界面处的结构。沿 <110> 方向观察钛酸锶钙钛矿晶胞，其中锶以绿色表示、氧以深红色表示、钛以浅红色表示，图中展示了**d** 未处理状态和（**e** 存在氧空位时的情况。氧缺失会导致钛原子远离空位移动，如箭头所示。**f**示意了偏压如何影响界面层。

未加偏压的初始状态（图4a）、低阻态（图4b）和高阻态（图4c）下 Co/Nb:STO界面的原子分辨率横截面扫描透射电子显微镜积分差分相位衬度（iDPC）图像。为了对嵌入由较重的锶原子和钛原子构成的基体中的较轻氧原子成像，我们采用了扫描透射电子显微镜积分差分相位衬度（iDPC），而非更常用的扫描透射电子显微镜高角环形暗场（HAADF）成像技术。[14, 15]。图4a中的扫描透射电子显微镜图像显示，除一层薄薄的界面区域外，钛酸锶块体由立方钙钛矿晶格构成，未观察到缺陷。块体内拍摄的所有图像均未显示任何位错，且具有预期的钙钛矿结构，如图4d所示。然而，靠近界面的结构偏离了这种钙钛矿结构，并且缺氧。界面附近氧离子的迁移导致带正电的Ti离子发生位移，使其沿 <001>方向不再与锶离子保持等距。图4e展示了氧离子流失如何导致钛沿远离界面的 <001> 方向以及沿 <1-10> 方向发生位移（见补充信息图S7）；这一现象与文献 [16] 中关于$La^{0.67}Sr^{0.33}MnO_3/Hf^{0.5}Zr^{0.5}O_2$的报道相似。我们认为，这一薄层的形成与肖特基势垒的形成有关。关于采用钛电极的非忆阻界面的分析，见补充信息图S6。

图4b显示了与图4a类似的结果，但此处对应的是施加2 V正偏置电压后切换至低阻态的样品，即图3中的上支路。比较这两幅图可见，低阻态下界面层的范围有所减小。这表明，在正电压作用下，氧与界面处钴原子之间的易断键断裂，氧回迁至钛酸锶衬底。另一方面，施加-3 V负偏置电压（对应图3中的下支路）会使氧从钛酸锶迁移至钴，导致氧化钴形成，并使钛酸锶中的氧空位增多；这一点可由Ti离子发生位移的区域扩大看出（见图4c）。这表明氧化钴的形成会使样品切换至高阻态。已有研究 [17, 18] 表明，系统内部的氧空位分布将决定氧空位受施加电压影响的方式。缺氧界面层的形成证实，在这些样品中，氧空位集中在界面附近。在这种情况下，预计施加正电压会使氧空位远离界面，而施加负电压会使氧空位趋向界面，这与我们的发现一致。在移除

电压后，界面层并未随时间重新形成，这表明存在氧迁移阻挡层。这些结果总结于图4f。

我们的结果直接证实，界面处存在均匀的缺氧层。缺陷态层的均匀性确保离子缺陷在器件缩小后仍能保留。我们还表明，施加正电压或负电压时，该层的物理范围会分别缩小或扩大。尽管现已证实离子对开关的贡献具有均匀性，但这并不能解释为何电阻窗口会在器件缩小后意外增大。接下来，我们将通过考察氧空位位点处的电子电荷俘获来讨论这一问题。

2.3 模型

为了理解这些氧空位如何影响器件的电学性质，我们考察电子与缺陷态之间的相互作用。这种相互作用最明显地体现在保持特性上，其表现为一个缓慢衰减的分量。这种行为是由电荷去俘获引起的。研究表明，这一过程发生在较长的时间尺度上，不同的态在数小时的长时间内仍可清晰区分，而且保持时间可通过施加的刺激进行调节 [12]。我们利用短电压脉冲测量每个器件在高阻态和低阻态下的保持特性。具体而言，交替施加电压分别为 +2 V 和 -3 V 的置位脉冲与复位脉冲，并在每次写入后，于 +0.3 V 或 -0.5 V 下读取小信号电流。图 5 显示了不同器件在低阻态（红色）和高阻态（黑色）下的状态保持特性。随着时间推移，两种状态下的电流都趋向于一个中间值。对于低阻态，其变化速率遵循幂律，这种规律通常见于高-κ 介电材料在偏压下的电荷俘获过程，称为居里–冯·施韦德勒定律。

该定律描述了介电材料中的非德拜型弛豫。这种行为在多种材料中都有实验证据，但其确切的物理起源仍不清楚。这里我们考虑注入电子被电介质内部缺陷态俘获的效应。这些被俘获电子产生的空间电荷会降低电场，进而减小流经电介质的电流。在这种情况下，俘获率可表示为：

$$\frac{dn}{dt} = n_0 \sigma \frac{J v_{th}}{q v_d} e^{-\frac{nh}{V}} \tag{1}$$

其中， n_0 是可用陷阱的最大数量， J/q 是净通量密度， v_{th} 和 v_d 分别是热速度和漂移速度， σ 是俘获截面。解这个方程可得 n的表达式：

$$n = \frac{V}{h} \ln\left(\frac{Q}{Q^*} + 1\right) \tag{2}$$

其中， $Q = \int J dt$ 是注入电荷总量，且

$$Q^* = \frac{V v_d q}{n_0 h v_{th} \sigma} \tag{3}$$

将电流表示为 $J = J_s t^{-\alpha}$ 并扩展此分析，可得：

$$\frac{\alpha}{1-\alpha} \ln(J_s) \approx m E_{ap} + n \tag{4}$$

其中， m 是一个常数。

我们还可以直接将俘获率与电流关联起来。 Q_T 表示电荷 Q 注入电介质时被俘获的电荷。比值 $\frac{dQ_T}{dQ}$是电流的函数。电流可写为：

$$J = J_s \frac{t}{t_0}^{-1/(\alpha+1)} \tag{5}$$

其中 $\alpha \geq 0$ 且 J_s 取决于传输机制。对于遵循指数关系的传导 ：

$$J_s \propto e^{\frac{(1-1/(\alpha+1))V}{V_0}} \tag{6}$$

此处， V_0 为常数。完整的推导见补充信息第 S1 节和图 S8，此外还将其扩展，以证明该结论适用于其他传输机制。

方程 4 和 6 直接从数学上证明，幂律中的指数 α 与电介质的有效陷阱密度或俘获电子的能力有关。该推导适用于更广泛的系统，不受电介质材料选择的限制。表 1 展示了各器件的低阻态指数 α 。较小器件的指数值较大，这表明与较大器件相比，最小器件中的陷阱密度更高。

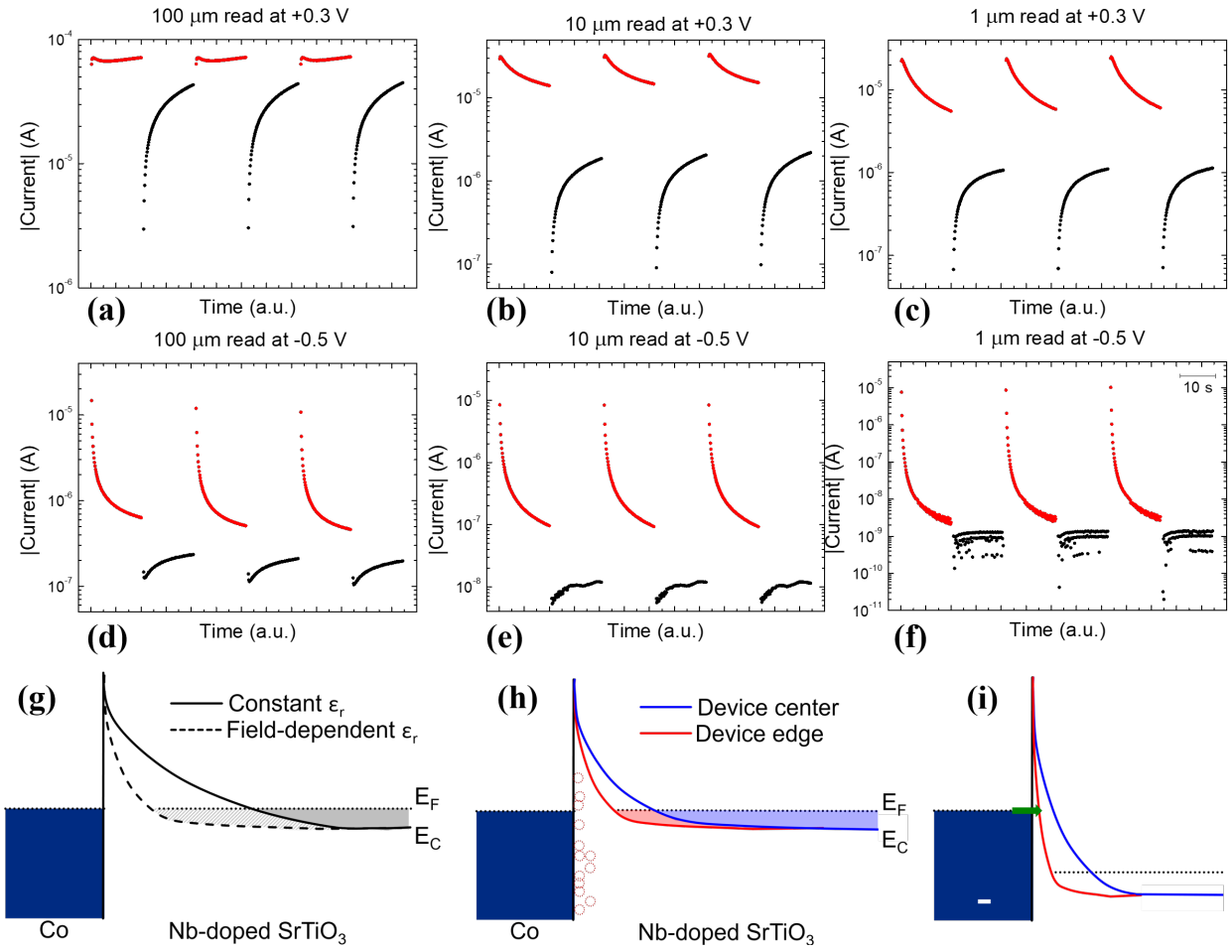

图 5：**俘获动力学与肖特基界面能景观**。不同尺寸器件在置位电压为 +2 V（红色）或 -3 V（黑色）后，分别在 +0.3 V**a-c**）和 -0.5 V（**d-f**）下读取时的保持特性。**g** 展示了电介质常数不依赖于电场（实线）和电介质常数依赖于电场（虚线）时，处于平衡状态的肖特基界面能量景观。 E_F 和 E_C 分别表示费米能级和导带。**h** 比较了器件中心和边缘在平衡状态下的能量景观，**i** 则比较了反向偏压下的能量景观。红色圆圈表示氧空位态，绿色箭头表示电子隧穿。

半径（μ米）	指数 读取电压为 +0.3 V	指数 读取电压为 -0.5 V
1	0.85±0.03	2.17±0.02
10	0.47±0.02	0.987±0.002
100	0.041±0.004	0.626±0.007

area ↓ ↑ trapping density

表 1：通过对图 5 中图表的低电阻态进行幂律拟合提取的指数的大小， α。

3 讨论

虽然该模型清晰地揭示了俘获密度与器件面积之间的相关性，但并未提供有关陷阱的信息；我们隐含地假设所有陷阱均属同一类型，而实际上陷阱的性质可能差异很大。俘获率可能取决于陷阱的空间位置，也可能通过缺陷迁移生成新陷阱。为了更准确地描述这一机制，我们需要考虑电介质内部不同位置上的陷阱分布。扫描透射电子显微镜研究表明，氧空位是需要考虑的最重要的一类俘获缺陷。由于其形成焓（0.51 eV[19]）和迁移焓（0.62 eV[20]）较低，$SrTiO_3$ 中存在大量氧空位；其在能量景观中的位置也已有充分记录[21]。

从上述讨论可以看出，这些肖特基结的能量景观远比仅依据构成接触的单个材料参数所建立的最常用模型所能描述的复杂得多 [22, 23]。这些结中的输运通常用热发射方程描述，其中的理想因子用于解释输运偏离理想二极管方程的情况。此外，该模型没有考虑到界面面积在空间上并不均匀，也没有考虑到有限面积器件的边界会产生影响。具体而言，已知在边缘附近，电场线的拥挤会增强场强，从而减小势垒宽度 [24, 25]。补充信息图 S11 和 S12 中的有限元模拟结果支持这一点，结果显示边缘周围以及器件尺寸缩小时，电场均显著增强。从模拟结果可以明显看出，在 1 μm 器件中仍存在清晰的电场梯度，这表明随着器件尺寸进一步缩小，比例有望继续增大；并且面电场在约 10 nm 之前并未出现明显饱和（图 S13）。

这一观察到的增强对于基于 Nb:STO 的忆阻器件尤为重要，因为衬底的介电常数强烈依赖于电场 [26, 27]。这将进一步改变此类忆阻器件中肖特基界面的电势景观。具体而言，在强电场作用下，Nb:STO 的介电常数会迅速降低，从而使有效肖特基势垒宽度减小，如图 5g 所示。因此，器件边缘附近的势垒宽度预计会大幅减小（图 5h）。研究还表明，电场可以改变缺陷态，并显著影响俘获参数[28]。

鉴于电荷传输受电势景观支配，这将极大地影响测得的电流，如图 5i 所示。势垒中的隧穿在器件边缘附近会增强，从而使器件周边附近的电流增大。这在低阻态（LRS）下尤为重要，此时界面中的俘获电荷已耗尽，且肖特基势垒更窄，因此隧穿会更多 [29, 12]。

界面输运由热发射和隧穿构成。热发射电流密度预计与面积无关，并且在低偏置电压下是高阻态中的主导机制，因此器件微缩后，高阻态中零电压附近的电流会降低，如图 3 所示。然而，在较高电压下，隧穿也会对电流有所贡献；随着面积减小，隧穿电流密度会增大。在图 1b 中，电流是在 +0.3 V 下读取的；我们预计此时热发射和隧穿都会对输运有所贡献，因此在高阻态下，10 和 1 μm 器件测得的电流相近。低阻态中的隧穿贡献会增加，尤其是在较小的器件中，这是因为其电场更强，导致观察到的电流密度随面积减小而增大。

通过在肖特基势垒两端施加电势，费米能级会发生偏移，使隧穿电子能够探测不同的氧空位能级。随着反向偏置电压增大，电子逐渐接触到更宽范围的态，并可能被这些态俘获。此外，在反向偏压下，界面处的电场增强，导致介电常数降低，肖特基势垒宽度也相应减小。由于局部场增强，靠近边缘区域的势垒宽度减小得更为显著。势垒变窄会减少电子-电子散射，使陷阱态成为输运的主要势垒。较强的边缘电场还可能促进氧空位迁移，使更多氧空位聚集在周边。因此，边缘附近的俘获效率高于中心区域。这是由电场调控介电常数所产生的一种独特效应，在传统半导体中不会发生，与 Nb:STO 忆阻器件设计有关。

半径为 r 的器件，其面积和周边可分别表示为 $A = \pi r^2$ 和 $p = 2\pi r$。周边与面积之比：

$$\frac{p}{A} = \frac{2\pi r}{\pi r^2} = \frac{2}{r} \tag{7}$$

这表明，随着器件面积减小，边缘效应变得更加显著。因此，在较小器件中，周边处的电流流动将占整体输运行为的更大比例。这解释了在施加较大偏置电压后进行缩放时所观察到的增强电流密度，也解释了较小器件中较大的有效俘获密度。具体而言，器件边缘周围的场增强会导致较小器件的动态范围增加，并解释了出乎意料的电阻窗口缩放现象。

4 结论

作为首次利用边缘效应相关附加电场的演示，我们的研究成功证明，将界面忆阻器的器件尺寸从 100 μm 微型化至 1 μm，能够增大电阻窗口，这与预期相反，且对器件间变异性和循环变异性表现出出色的稳健性。在初始态、高阻态和低阻态下拍摄的扫描透射电子显微镜图像证实，存在一层均匀的缺氧界面层，其物理范围会受到施加电场的影响。

然而，这并不能解释器件微缩为何会增大电阻窗口。描述电子与氧空位陷阱态相互作用的模型表明，随着器件微缩，有效陷阱密度会增加。将器件直接集成到掺铌钛酸锶（Nb 掺杂 $SrTiO_3$ ）半导体平台上的优势在于，局部增强的电场能够可控地调节界面处的界面能量景观；有限元模拟证实，这使边缘效应在更小的器件中发挥更大作用。随着可用于神经形态硬件的材料和器件种类迅速丰富，当前重点应是将其高效集成到半导体平台上，以实现芯片级应用并大幅缩小面积占用。在这方面，我们的研究提供了一个令人鼓舞的方向。

5 实验部分

5.1 电学器件制备

我们研究了一系列 Co/Nb 掺杂 $SrTiO_3$ 器件，其中器件面积在整个系列中变化了五个数量级，范围从 10^{-12} 到 10^{-8} m^2, , 半径介于 800 nm 和 100 μm 之间。器件采用 Crystec 提供的 Nb 掺杂 $SrTiO_3$ (001) 衬底制备，掺杂浓度为 0.1 wt%。$SrTiO_3$ 由沿 [001] 方向交替排列的 SrO 和 TiO_2 平面构成。收到时的衬底与精确晶体学方向略有偏切，因此表面存在两种表面终止面的混合。研究表明，在不同表面终止面上生长的肖特基势垒，其局部性质可能有所不同；因此，为了尽量减小衬底不同区域之间的差异，需要获得单一表面终止面。为确保终止层为 TiO_2, , 采用缓冲氢氟酸（BHF）进行了化学处理。随后在 O_2 气流中以 960 ℃ 进行退火处理，流量为 300 $ccmin^{-1}$ ，以促进表面原子重新取向，形成原子级平坦且规整的台阶表面。利用原子力显微镜对衬底不同区域进行成像，确认存在均匀的台阶。随后在衬底上涂覆负性光刻胶（AZ nLOF 2020），并通过电子束光刻制备不同面积的圆形图案。采用电子束蒸发沉积一层较厚的 AlO_x 绝缘层，并通过剥离在衬底上形成一组直接接触。通过第二步光刻，使用正性光刻胶（950 K PMMA）定义方形接触焊盘，每个焊盘覆盖一个孔及其周围部分 AlO_x；为尽量减少接触电阻显著不同所引起的寄生效应，所有器件的焊盘尺寸均相同。随后在高真空（$\sim 10^{-6}$ Torr）下通过电子束蒸发沉积 Co（20 nm）和 Au（100 nm）覆盖层。

5.2 电学表征

电学测量使用连接到是德科技 B1500A 半导体器件参数分析仪的两个远程感测与开关单元（RSU）的探针进行。在使用扫描测量单元（SMU）进行电压扫描测量时，衬底底部保持在 0 V，同时向顶部电极施加电压。由于器件具有二极管特性，且电阻开关幅度很大，单次扫描测量中的电流测量值跨越多达 9 个数量级。因此，测量电流时采用了自动量程。高扫描速率下进行的耐久循环测量中，可以观察到这一设置的影响：当达到 SMU 量程上限时，电流会出现平台。

5.3 扫描透射电子显微镜

本研究所讨论的样品采用 Crystec 提供的 $SrTiO_3$ (001) 衬底，其中 Ti 位的铌掺杂含量为 0.1 wt%。样品表面通过缓冲氢氟酸（BHF）化学处理制备。随后，在 O_2 气流为 300 $ccmin^{-1}$的条件下，将衬底于 960°C 退火。对于扫描透射电子显微镜样品，通过电子束蒸发沉积 20 nm 的钴薄膜，并在其上覆盖 20 nm 的金和 20 nm 的铂。由此制备了三种扫描透射电子显微镜薄片：未处理（无偏压）样品、低阻态（LRS）样品和高阻态（HRS）样品。使用探针台，分别向样品施加 +2V 和 -3 V 的偏置电压，以制备低阻态和高阻态样品。使用配备镓聚焦离子束的 Helios G4 CX 双束系统，沿 <110> 方向从样品中提取扫描透射电子显微镜薄片。随后使用聚焦离子束将薄片减薄，使其能够透过电子。成像使用工作电压为 300 kV 的赛默飞世尔科技 Themis Z 扫描透射电子显微镜系统完成。

扫描透射电子显微镜-高角环形暗场（HAADF）图像应用最为广泛，因为这类图像易于解读：原子柱在暗色背景中呈现为亮点，亮点的亮度与平均原子序数 Z ($\sim Z^{1.7}$) 成正比。这种技术非常适合成像重元素，但氧等较轻元素更难检测；当它们嵌入含有更重元素（如锶）的基体中时，便无法被准确检测。因此，为了深入了解氧离子在此处发挥的重要作用，我们采用了扫描透射电子显微镜-积分差分相位衬度

成像，而非扫描透射电子显微镜高角环形暗场成像。这种技术使用四象限环形明场探测器，可获取样品的投影局部静电势（样品较薄时），并且相较于传统的环形明场（ABF）成像具有明显优势 [14, 15]。

5.4 仿真

有限元建　　模采用 COMSOL Multiphysics 对界面处的电场分布进行了模拟　　.

5.5 统计分析

对于 |电流|-电压曲线，取测量电流的绝对值；为确定电流密度，将测量电流除以钴接触电极的面积。表 1 中的数值通过使用幂律方程对图5a-f中的数据进行迭代拟合获得，方程形式为 $I = I_0(t - t_0)^{-\alpha}$，所采用的方法是列文伯格-马夸尔特算法；报告的误差为通过该方法计算得到的标准误差。拟合结果见补充图S9。对于不同器件以及不同的读取电压和置位电压，均验证了指数与器件面积之间的反向标度关系。使用 OriginPro 8.5 对电学测量结果进行绘图和分析。对每种面积的四个器件重复进行测量，以检验可重复性和结果有效性。

For STEM i图像，多个针对三种偏压条件中的每一种，均采集了多个区域的图像以验证结果。IDPC 图像经过滤波　　使用 Velox 应用高通高斯滤波器。

致谢

A.G. 获得了 CogniGron 中心和格罗宁根大学的支持。器件制造借助 NanoLab NL 的设施完成。我们感谢 J. G. Holstein、H. H. de Vries、A. Joshua、T. Schouten 和 H. Adema 提供的技术支持。我们感谢 R. J. E. Hueting、P. Nukala、S. de Graaf 和 T. Kenyon 的宝贵讨论。A.G.、D.G.、I.B. 和 T.B. 从与功能材料自旋电子学组成员的交流中获益良多。

利益冲突

作者声明不存在利益冲突

作者贡献

A.G. 和 T.B. 提出了研究构想并设计了器件。A.G. 和 D.G. 制作用于电学测量的器件，并与 I.B. 一起进行了电学测量。D.G. 推导了手稿中讨论的数学模型。M.A. 和 A.G. 制作用于扫描透射电子显微镜的薄片，M.A. 拍摄了扫描透射电子显微镜图像。A.G. 进行了有限元模拟。所有作者均分析了数据、讨论了结果并认同其意义。所有作者均参与了手稿的撰写。

参考文献

[1] S. Hamdioui、M. Taouil、H. A. Du Nguyen、A. Haron、L. Xie 和 K. Bertels. 忆阻器：实现大数据存内计算架构的关键。载于*2015*年国际忆阻系统会议（*MEMRISYS*），第1–3页。IEEE，2015年。[2] M. V. Wilkes. 存储墙与 CMOS 的终点。*ACM SIGARCH* 计算机体系结构新闻，23(4):4–6，1995年。[3] S. A. McKee. 关于存储墙的思考。载于第*1*届计算前沿会议论文集，第162页，2004年。[4] M. Horowitz. 1.1 计算能耗问题（以及我们可以采取的措施）。载于*2014*年 *IEEE* 国际固态电路会议论文集（*ISSCC*），第10–14页。IEEE，2014年。[5] K. Lahiri 和 A. Raghunathan. 系统级片上通信架构的功耗分析。载于第*2*届 *IEEE/ACM/IFIP* 硬件/软件协同设计与系统综合国际会议论文集，第236–241页，2004年。[6] S. Hamdioui、D. Gizopoulos、G. Guido、M. Nicolaidis、A. Grasset 和 P. Bonnot. 未来技术节点中实时系统的可靠性挑战。载于*2013*年欧洲设计、自动化与测试会议暨展览（*DATE*），第129–134页。IEEE，2013年。[7] S. Manipatruni、D. E. Nikonov 和 I. A. Young. 利用自旋与极化实现超越 CMOS 的计算。《自然·物理》，14(4):338–343，2018年。

[8] A. Sawa. 过渡金属氧化物中的电阻开关。Materials Today，11(6):28–36，2008年。[9] L. Zhang、B. Neely、D. Franklin、D. Strukov、Y. Xie 和 F. T. Chong. Mellow writes：通过选择性慢速写回延长电阻式存储器寿命。载于2016年 ACM/IEEE 第43届年度国际计算机体系结构研讨会（ISCA），第519–531页。IEEE，2016年。[10] D. S. Ang、Y. Zhou、K. S. Yew 和 D. Berco. 面向神经形态计算的价态变化忆阻器的面积可扩展性。Applied Physics Letters，115(17)，2019年。[11] M. Lanza、A. Sebastian、W. D. Lu、M. Le Gallo、M.-F. Chang、D. Akinwande、F. M. Puglisi、H. N. Alshareef、M. Liu 和 J. B. Roldan. 用于数据存储、计算、加密和射频通信的忆阻技术。Science，376(6597):eabj9979，2022年。[12] A. S. Goossens、A. Das 和 T. Banerjee. Nb 掺杂 $SrTiO_3$肖特基界面处由电场驱动的忆阻行为。Journal of Applied Physics，124(15):152102，2018年。[13] T. F. Tiotto、A. S. Goossens、T. Banerjee、J. P. Borst 和 N. A. Taatgen. 学习使用 Nb 掺杂 $SrTiO_3$ 忆阻器近似函数。Frontiers in Neuroscience，14:1456，2020年。[14] I. Lazi´c、E. G. T. Bosch 和 S. Lazar. 薄样品的相位衬度 STEM：集成微分相位衬度。Ultramicroscopy，160:265–280，2016年。[15] S. de Graaf、J. Momand、C. Mitterbauer、S. Lazar 和 B. J. Kooi. 分辨金属—金属氢化物界面处的氢原子。Science Advances，6(5):eaay4312，2020年。[16] P. Nukala、M. Ahmadi、Y. Wei、S. de Graaf、E. Stylianidis、T. Chakrabortty、S. Matzen、H. W. Zandbergen、A. Björling、D. Mannix 等. 基于氧化铪的铁电器件中的可逆氧迁移与相变。Science，372(6542):630–635，2021年。[17] J. Sung Lee、S. Buhm Lee、B. Kahng 和 T. Won Noh. 含可移动掺杂剂半导体中的两条方向相反的滞回曲线。Applied Physics Letters，102(25):253503，2013年。[18] S. Lee、J. S. Lee、J.-B. Park、Y. Koo Kyoung、M.-J. Lee 和 T. Won Noh. 双极电阻开关 Pt/Nb:$SrTiO_3$ 器件中电极下方氧空位积聚导致的反常效应。APL Materials，2(6):066103，2014年。[19] R. A. De Souza、V. Metlenko、D. Park 和 T. E. Weirich. 单晶 $SrTiO_3$中氧空位的行为：平衡分布与扩散动力学。Physical Review B，85(17):174109，2012年。[20] L. Iglesias、A. Sarantopoulos、C. Magén 和 F. Rivadulla. 应变 $SrTiO_3$ 薄膜中的氧空位：形成焓与调控。Physical Review B，95(16):165138，2017年。[21] C. Freysoldt、B. Grabowski、T. Hickel、J. Neugebauer、G. Kresse、A. Janotti 和 C. G. Van de Walle. 固体中点缺陷的第一性原理计算。Reviews of Modern Physics，86(1):253，2014年。[22] W. Schottky. 关于阻挡层整流器和点接触整流器的半导体理论。Zeitschrift für Physik，113(5):367–414，1939年。[23] N. F. Mott. 晶体整流器理论。伦敦皇家学会会刊：A辑，数学与物理科学，171(944):27–38，1939年。[24] E. H. Rhoderick. 金属—半导体接触。IEE Proceedings I-Solid-State and Electron Devices，129(1):1，1982年。[25] A. J. Willis. 肖特基二极管中的边缘效应。Solid-State Electronics，33(5):531–536，1990年。[26] J. H. Barrett. 钙钛矿型晶体中的介电常数。Physical Review，86(1):118，1952年。[27] R. A. van der Berg、P. W. M. Blom、J. F. M. Cillessen 和 R. M. Wolf. 金属—半导体 $SrTiO_3$ 肖特基二极管中的场依赖介电常数。Applied Physics Letters，66(6):697–699，1995年。[28] G. A. Dussel 和 R. H. Bube. 电场对俘获过程的影响。Journal of Applied Physics，37(7):2797–2804，1966年。[29] E. Mikheev、B. D. Hoskins、D. B. Strukov 和 S. Stemmer. Pt/Nb:$SrTiO_3$结中的电阻开关及其抑制。Nature Communications，5(1):1–9，2014年。

补充数据

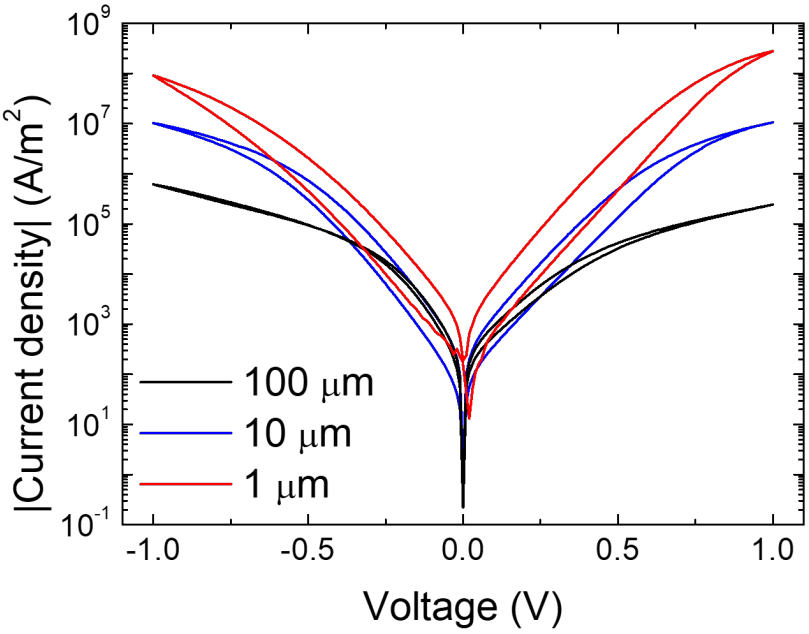

图 S1：**初始器件的电流密度**。展示了径向尺寸为 100 μm（黑色）、10 μm（蓝色）和 1 μm（红色）的器件的结果。

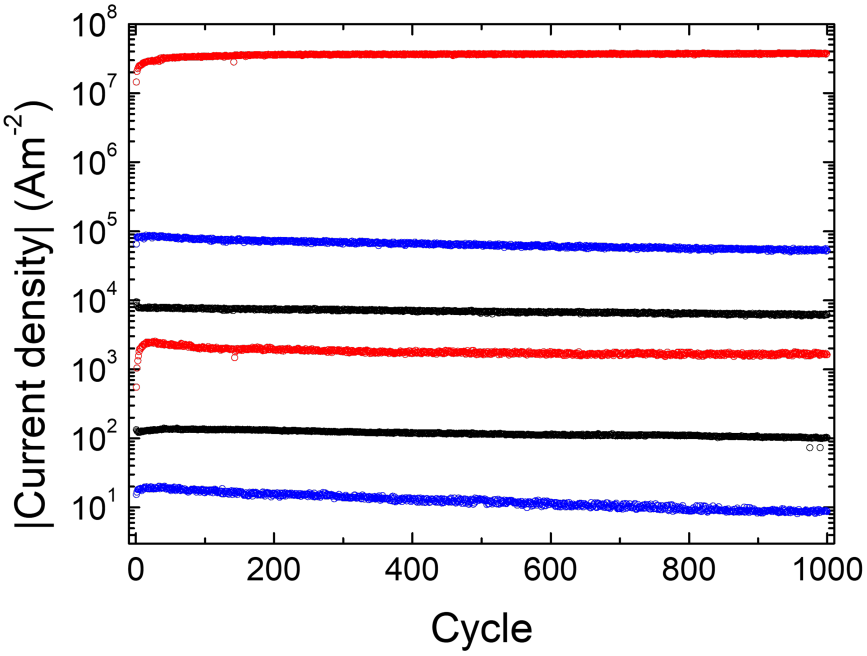

图 S2：**循环间变化**。器件尺寸为 100 μm（黑色）、 10 μm（蓝色）和 1 μm（红色）时，在 +0.3 V 下读取的电流密度。

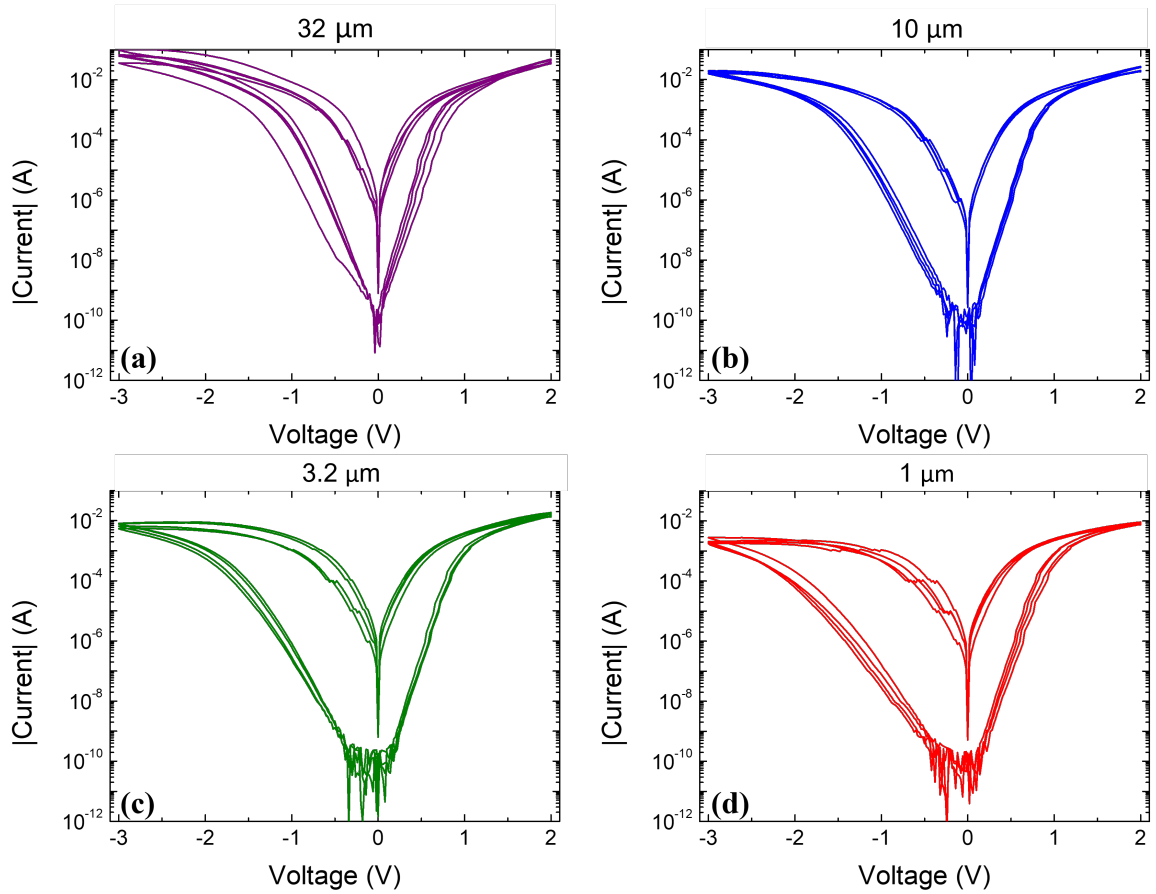

图 S3：**器件间变化**。以 1.52 Vs^{-1} 的速率，在 +2 V 的置位电压与 -3 V 的复位电压之间测得从 +2V 到 -3 V 再到 +2 V 的电流-电压扫描。展示了不同器件的测量结果，以说明器件间变异性较低。

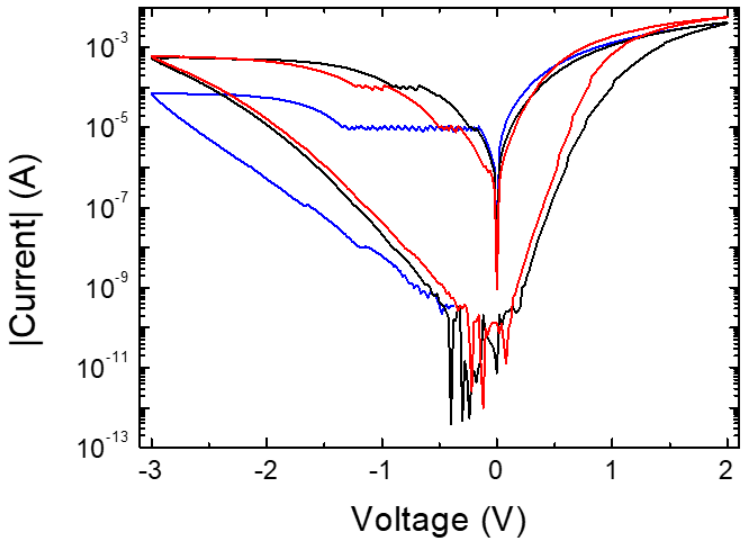

图 S4：**800 nm 器件的测量结果：**在更大的电压范围下控制时的器件间变化。红色曲线表示正文中展示的器件。这些器件的变异程度更大，这是因为制备工艺造成其面积和边缘存在细微差异。不过，它们的电阻比仍然很高。

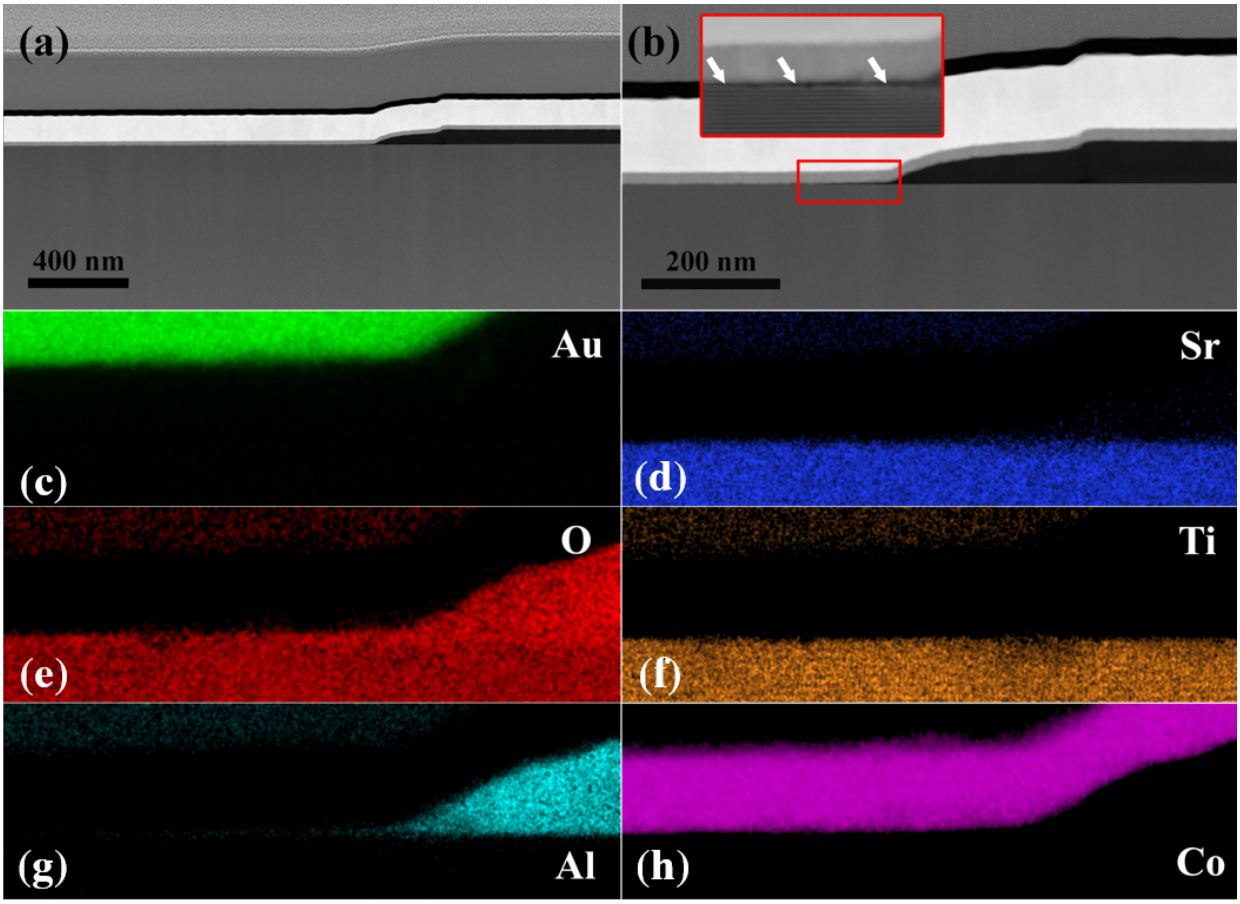

图 S5：**电学测量器件的侧壁轮廓：**（a）和（b）STEM-HAADF图像。（b）中的插图标出了靠近边缘的界面区域。（c）金、（d）锶、（e）氧、（f）钛、（g）铝和（h）钴的扫描透射电子显微镜-能量色散X射线谱（STEM-EDX）元素分布图像。

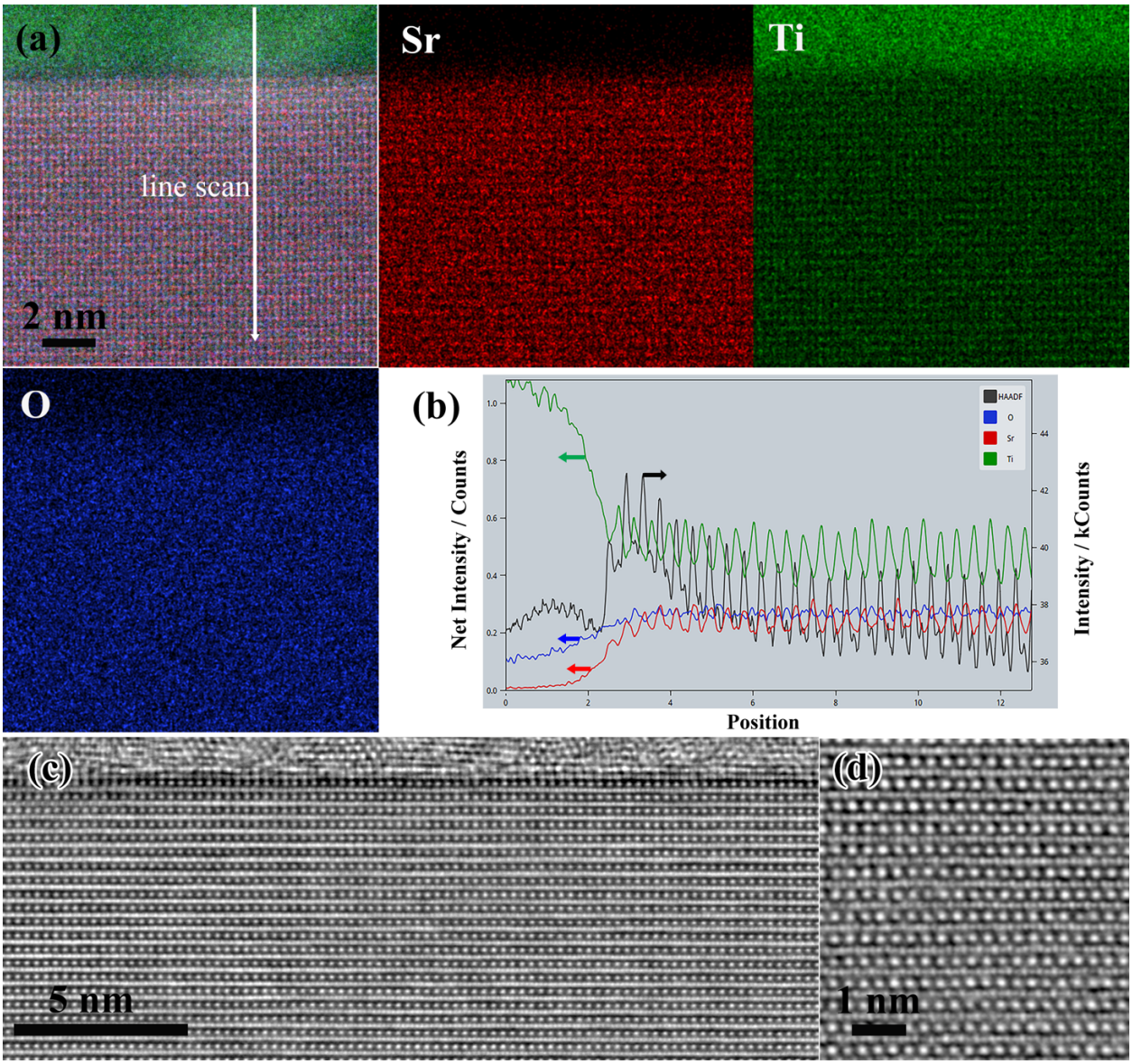

图 S6：**Nb:STO/Ti 界面：**（a）Sr、Ti 和 O 的 STEM-EDX 元素分布图。（b）沿（a）中线扫描方向，元素强度随位置的变化。（c）界面处和（d）远离界面处的 STEM-iDPC 图像。

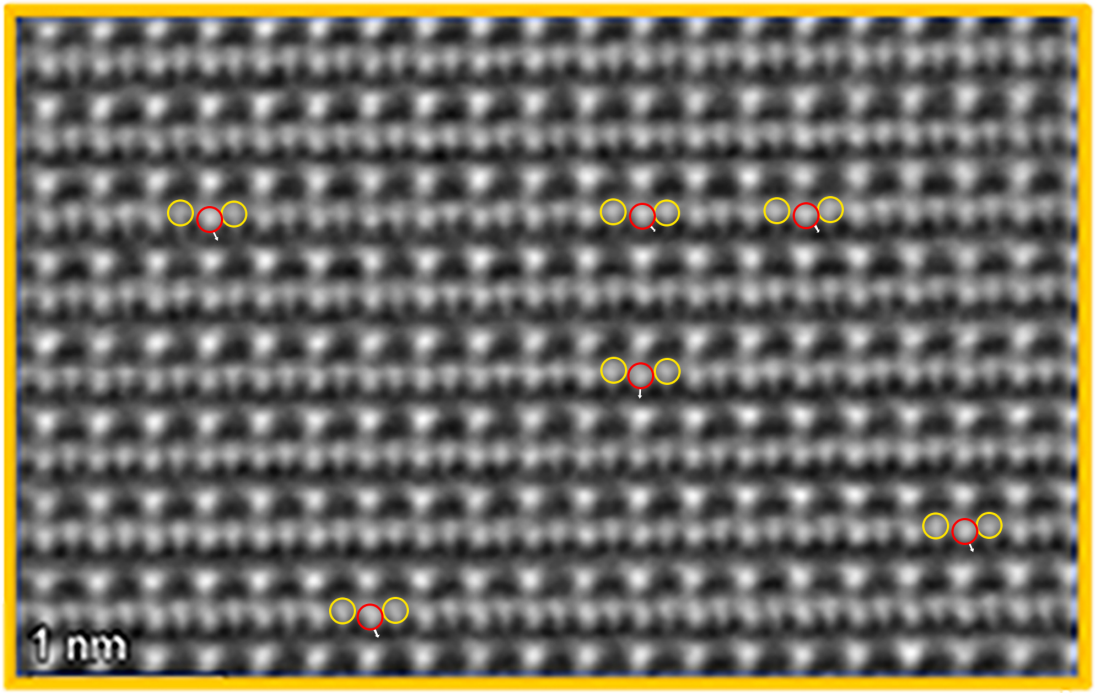

图 S7：**Ti柱位移：** 界面附近Nb:STO衬底内部的积分差分相位衬度扫描透射电子显微镜图像。部分占据理想钙钛矿位置的Ti离子以黄色标出，发生位移的离子以红色标出，箭头表示位移方向。

S1. 俘获密度与指数之间关系的推导。

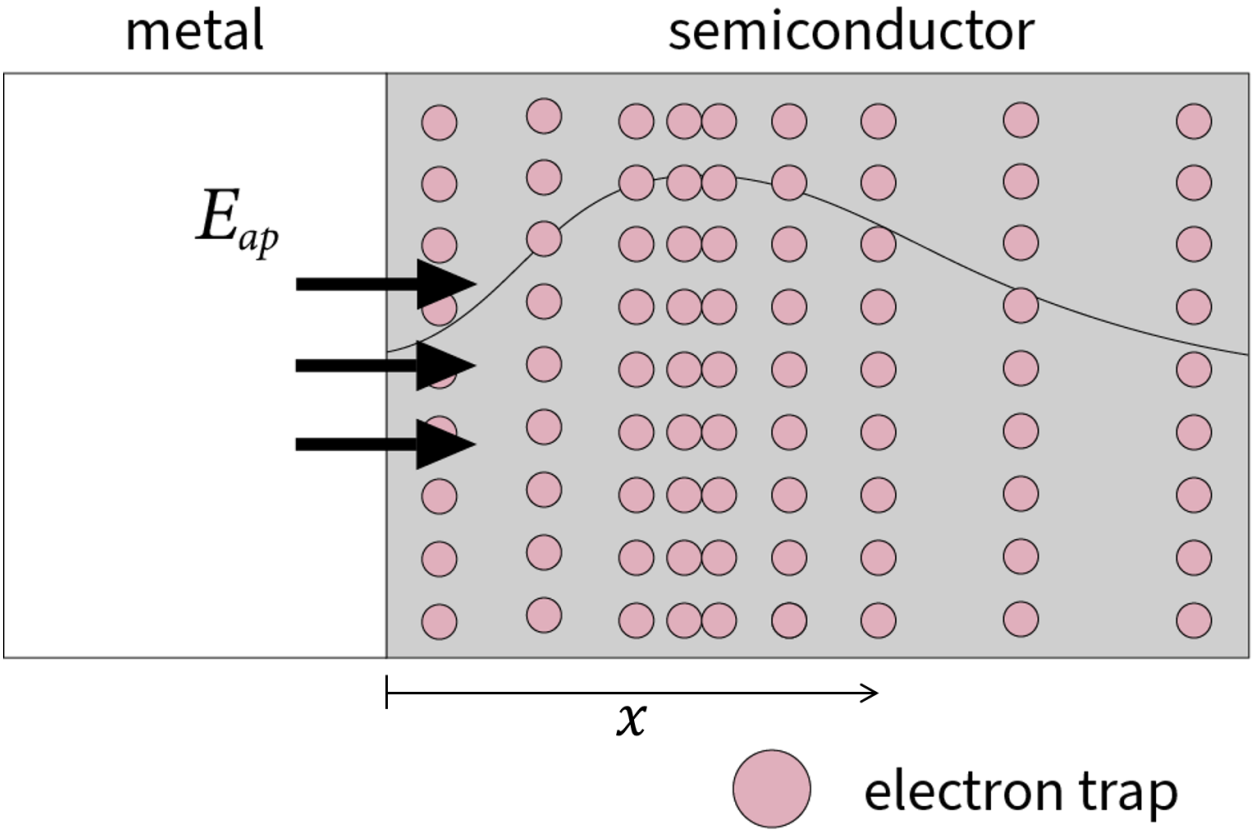

图 S8：**S1 节中参数示意图：** E_{ap} 和 x 分别表示相对于界面定义的外加电场和俘获电荷质心。黑色曲线表示电介质中俘获电荷数密度 n随位置的变化。

如果假设俘获速率不依赖于陷阱的位置，则电场 E可表示为：

$$E = E_{ap} - \frac{qnx}{\eta} \tag{S1}$$

其中， E_{ap} 为外加电场， q 为电荷， n 为俘获电荷数密度， x 为相对于界面的俘获电荷质心， η 为介电常数。在 [S1], 中，基于三种机制分析了电荷俘获，即一级俘获、具有库仑相互作用的一级俘获，以及由于态的产生而在注入过程中不断增强的俘获。他们推导出的各机制下的电流表达式在定性上相似。因此，为简单起见，我们将俘获密度速率视为一级衰减，并加入电子-电子相互作用。库仑斥力可能会使被俘获电子周围的俘获位点失活。速率方程中通过乘以一个概率因子来考虑这一点。如果陷阱使体积为 h的电介质失活，则俘获量会减少一个因子$(1 - \frac{h}{V})$，其中 V为电介质的体积。对于 n 个俘获电荷，该因子为$(1 = \frac{h}{V})^n$。俘获率可表示为：

$$\frac{dn}{dt} = (n_0 - n)\sigma\frac{Jv_{th}}{qv_d}\left(1 - \frac{h}{V}\right)^n \tag{S2}$$

其中， n_0 是可用陷阱的最大数量， J/q 是净通量密度， v_{th} 和 v_d 分别是热速度和漂移速度， σ 是俘获截面。假设电介质的总体积远大于陷阱事件导致失活的体积，因此， $1 \gg h/V$和 $n_0 \gg n$，该表达式可简化为：

$$\frac{dn}{dt} = n_0\sigma\frac{Jv_{th}}{qv_d}e^{-\frac{nh}{V}} \tag{S3}$$

求解该方程可得 n的以下表达式:

$$n = \frac{V}{h}\ln\Big(\frac{Q}{Q^*}+1\Big) \tag{S4}$$

其中 $Q=\int Jdt$ 为总注入电荷，且

$$Q^* = \frac{Vv_dq}{n_0hv_{th}\sigma} \tag{S5}$$

我们用电场表示电流:

$$\ln\Big(\frac{J}{J_0}\Big) = \frac{E}{E_0} = \frac{1}{E_0}\Big(E_{ap} - \frac{V}{h}\frac{qx}{\eta}\ln\Big(\frac{Q}{Q^*}+1\Big)\Big) \tag{S6}$$

电流随时间呈衰减幂律变化， $J=J_st^{-\alpha}$，而注入电荷随时间的函数为:

$$Q(t) = \int Jdt = \frac{J_st^{1-\alpha}}{1-\alpha} \tag{S7}$$

将 S7 代入 S6，当 $Q/Q^*\gg$时可得，并注意到 $\beta = \frac{Vqx}{hE_0\epsilon}$:

$$\begin{aligned}\ln\Big(\frac{J}{J_0}\Big) &= \frac{1}{E_0}\Big(E_{ap} - \beta\ln\Big(\frac{J_st^{1-\alpha}}{Q^*(1-\alpha)}\Big)\Big)\\ &= \frac{1}{E_0}\Big(E_{ap} - \beta\ln\Big(\frac{J_st}{Q^*(1-\alpha)}\Big) - \beta(1-\alpha)\ln t\Big)\end{aligned} \tag{S8}$$

将 S8 与 $J=J_st^{-\alpha}$ 比较可得

$$\begin{aligned}\alpha &= \beta(1-\alpha)\\ &= \frac{\beta}{1+\beta}\end{aligned} \tag{S9}$$

and

$$J_s \approx mE_{ap} + n - \beta\ln(J_s) \tag{S10}$$

其中 m 涵盖若干材料参数。将 β 用 α表示，并且由于测得的电流小于10^{-4} A，与 ln(J_s) 相比可忽略 J_s，因此得到:

$$\frac{\alpha}{1-\alpha}\ln(J_s) \approx mE_{ap} + n \tag{S11}$$

β为正。根据方程 S9，我们知道 α 介于 0 和 1 之间，且是 β的单调递增函数。考虑到 $\beta = \frac{V}{h}\frac{qx}{E_0}$，有效密度、$V/h$ 或 x 的增加都会使α增加，其中前者在物理上更有可能。

除了推导俘获电荷数密度的显式表达式外，我们也可以直接将俘获率与电流关联起来，例如文献 [S2]中的做法。我们用 Q_T 表示当电荷 Q注入电介质时被俘获的电荷。假设比值 $\frac{dQ_T}{dQ}$是电流的函数，即

$$\frac{dQ_T}{dQ} = f\Big(\frac{J}{J_0}\Big) \tag{S12}$$

将方程 S12 代入方程 S1，得到:

$$\frac{dE}{dt} = \frac{Jx}{l\eta}\frac{dQ_T}{dQ} \tag{S13}$$

其中 l 是电介质的长度，且 $J=\frac{dQ}{dt}$。为将其与幂律关联起来，我们假设解的形式为

$$\frac{dQ_T}{dQ} = \Big(\frac{J}{J_0}\Big)^{\alpha} \tag{S14}$$

其中 $\alpha\geq 0$。电流的一般表达式可写为:

$$J(E) = J_0(E)e^{g(E_0)} \tag{S15}$$

其中，具体函数由相关传导机制决定。具体而言，利用式 S14，电流可表示为

$$J = J_s \frac{t}{t_0}^{-1/(\alpha+1)} \tag{S16}$$

对于由指数关系（如式 S6）给出的传导:

$$J_s \propto e^{\frac{(1-1/(\alpha+1)V}{V_0}} \tag{S17}$$

而对于由弗伦克尔-普尔方程决定的传导，可得:

$$J_s \propto V e^{\frac{(1-1/(\alpha+1)V^{\frac{1}{2}}}{V_0}} \tag{S18}$$

对于福勒-诺德海姆导电，可得:

$$J_s \propto V^2 e^{\frac{(1-1/(\alpha+1))V^{-1}}{V_0}} \tag{S19}$$

其中， V_0 是一个常数。

在双对数尺度上绘制电流与电压的关系，即可确定系统中的主导传输机制。方程 S9、S11、S17、S18 和 S19 表明，有明确的理论证据证明，幂律中的指数与有效陷阱密度或电介质捕获电子的能力直接成正比，而与哪种传输机制占主导无关。

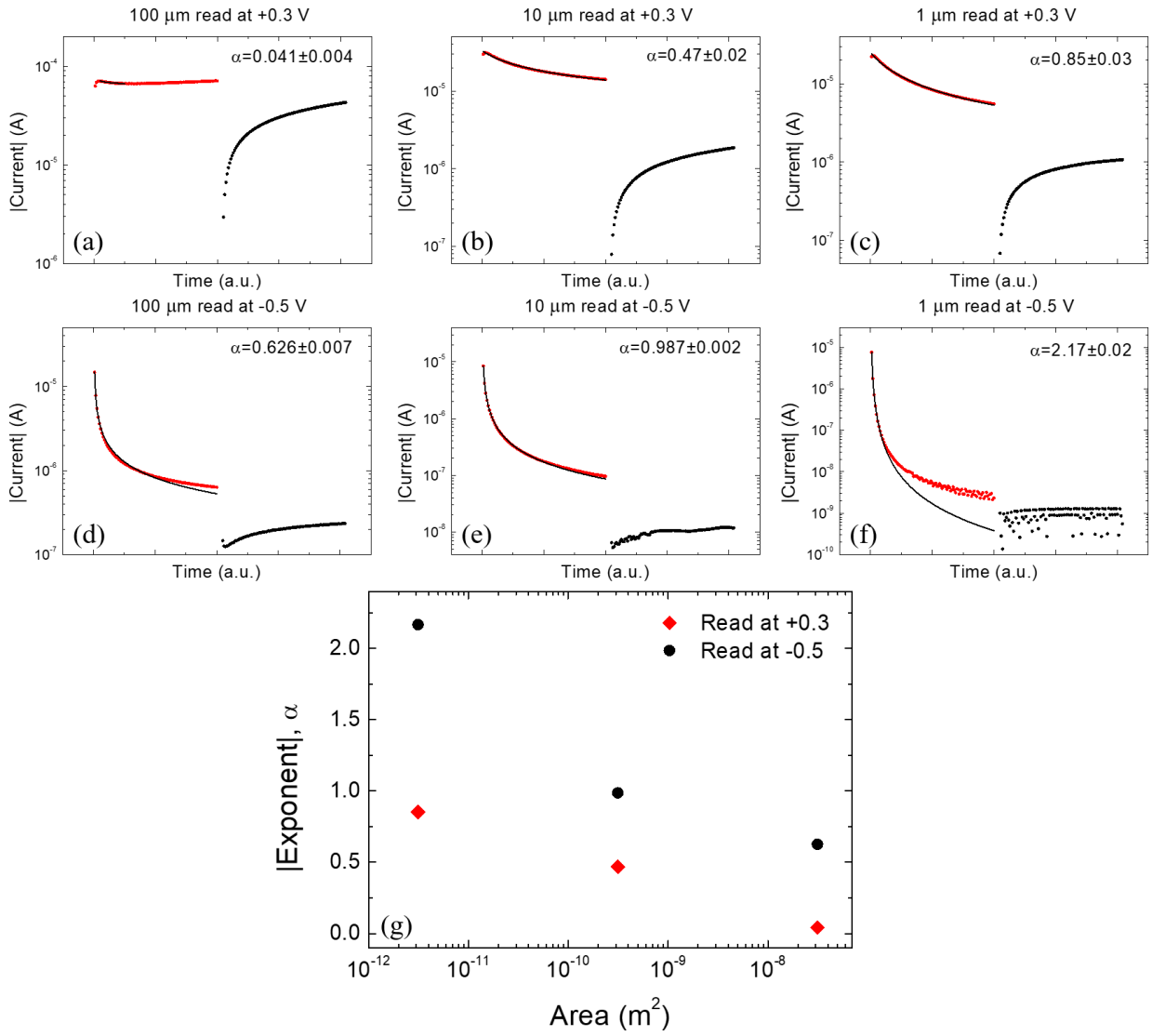

图 S9：**对保持数据进行拟合以提取指数 α：**所用模型为 $|I| = I_0(t - t_0)^{-\alpha}$)，其中 $|I|$ 和 t 分别为绝对电流和时间，I_0 和 t_0 为拟合参数。拟合的调整后 R^2 值分别为 (a) 0.99237、(b) 0.99475、(c) 0.99689、(d) 0.99717、(e) 0.99995 和 (f) 0.99996。(g) 展示了指数对面积的依赖关系。

S2. 边缘效应建模

为了直观呈现器件中的场分布，我们使用有限元分析（COMSOL）。建模几何结构如图 S10 所示。在每次仿真中，Nb:STO衬底均建模为一个介电常数为 300、厚度为 0.5 mm（沿 z 轴方向）的立方体，对应于实验研究中使用的厚度。在衬底顶面（z=0.5 mm）放置了半径为 1 μm、10 μm 或 100 μm 的圆形Co电极。在衬底底面（z=0）设置接地节点，同时向顶部的 Co 电极施加电压。对于图 S13 中的仿真，我们缩小了衬底的尺寸，以提高网格的分辨率。这样做是为了确保 10 nm 器件的电极保持圆形；经确认，这不会影响电场强度。

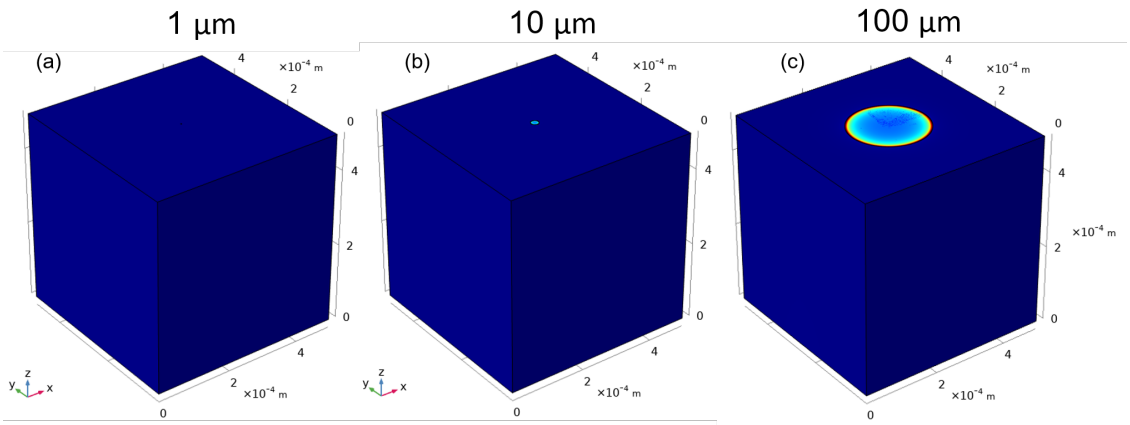

图 S10：**模型样品几何结构：**Nb:STO衬底以厚度为 0.5 mm（沿 z 方向）的立方体表示。半径为 (a) 1 μm、(b) 10 μm 和 (c) 100 μm 的圆形Co电极置于衬底顶面（z=0.5 mm）。衬底底部（z=0）设有接地节点，而顶部 Co 电极上施加电压。

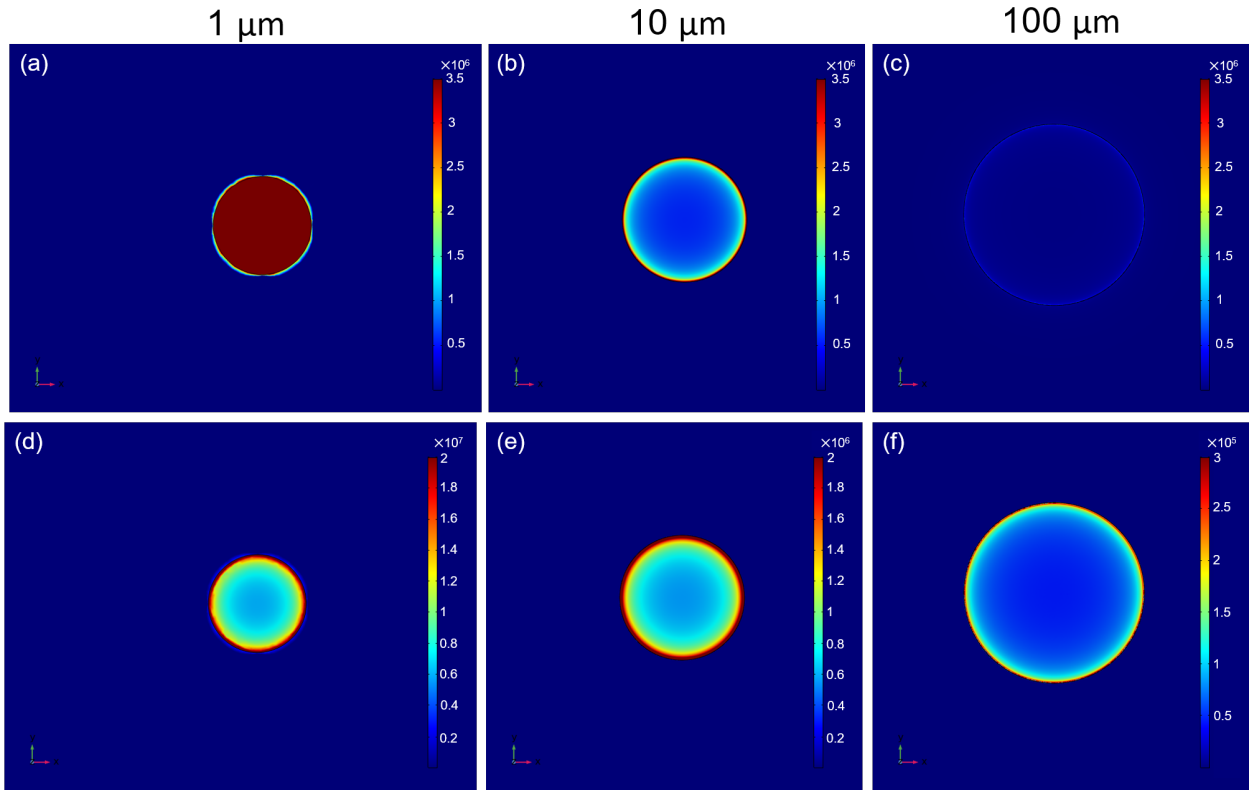

图 S11：**-3 V 时的电场：**沿表面法线（z 方向），对于 (a)+(d) 1 μm、(b)+(e) 10 μm 和 (c)+(f) 100 μm 的器件。顶行图（(a)-(c)）使用相同的比例尺，最大电场值为 3.5 $\times 10^6$ Vm^{-1}。底行图的比例尺最大值分别为 (d) 2 $\times 10^7$ Vm^{-1}、(e) 2 $\times 10^6$ Vm^{-1} 和 (f) 3 $\times 10^5 Vm^{-1}$。

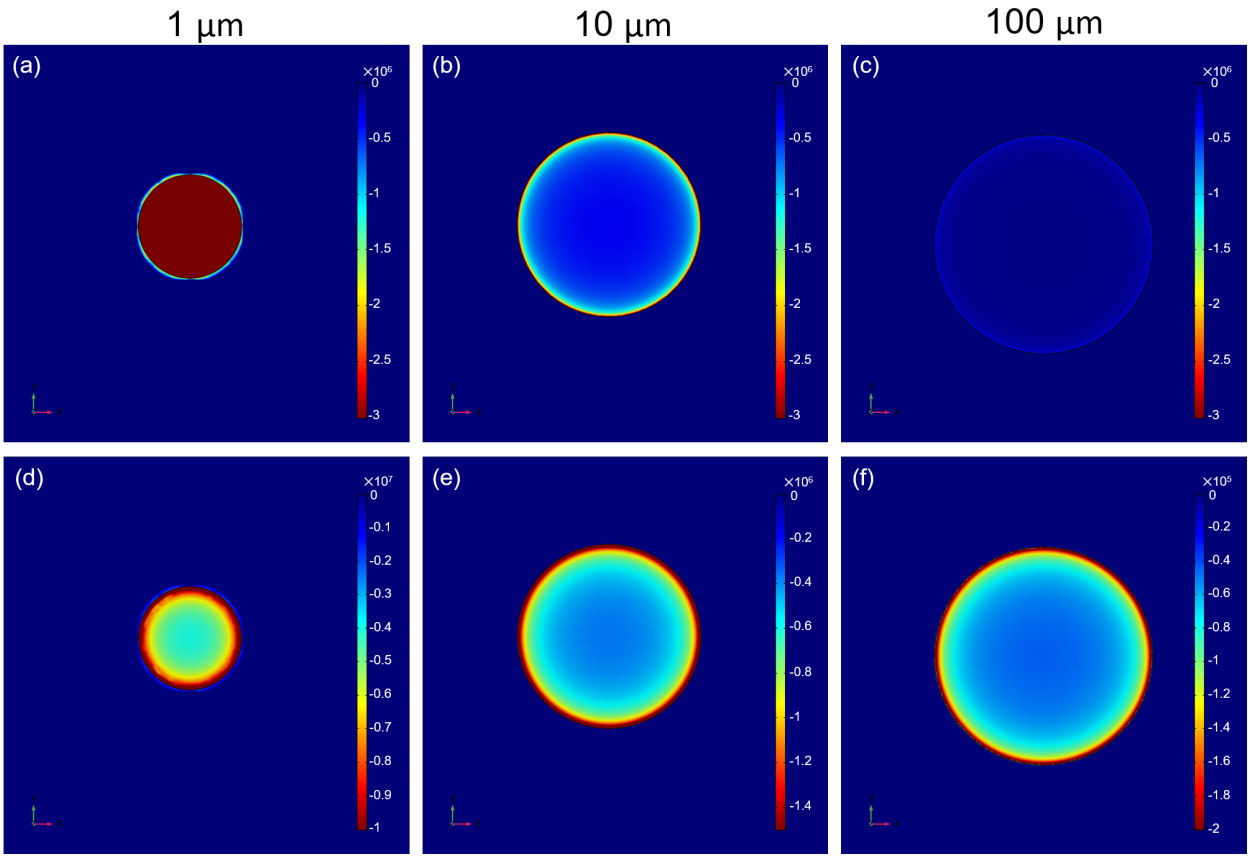

图 S12：**电场位于 +2 V：** 沿表面法线（z 方向）分布，适用于（a）+（d） 1 μm、（b）+（e） 10 μm 和（c）+（f）100 μm 器件。顶部一行的图（（a）–（c））使用相同的比例尺，最大场强为 -3 $\times 10^6$ Vm^{-1}。对于底部一行，比例尺的最大值分别为（d）-1 $\times 10^7$ Vm^{-1}、（e）-1.5 $\times 10^6$ Vm^{-1} 和（f）-2$\times 10^5$ Vm^{-1}。

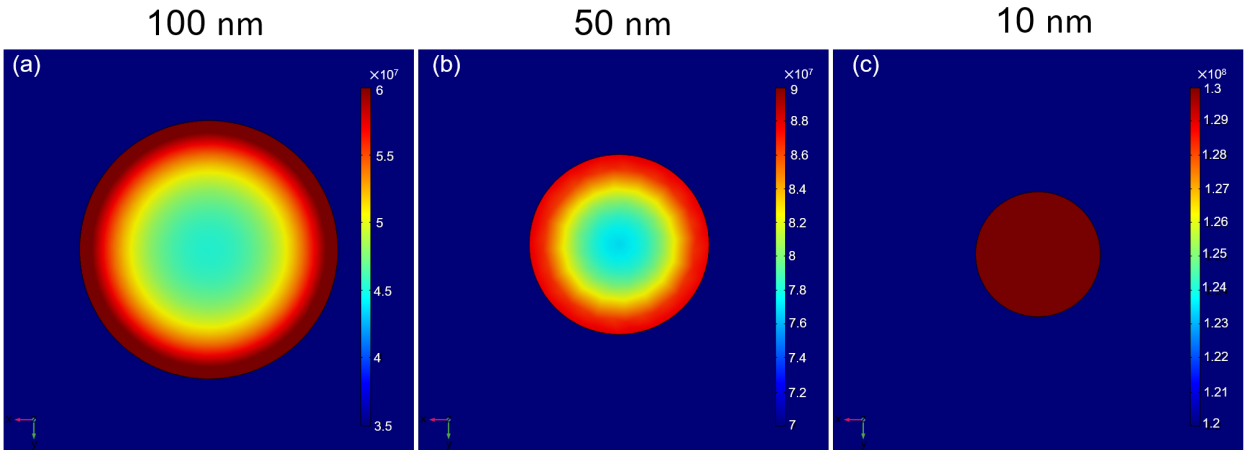

图 S13：**-3 V 下的电场：**沿表面法线（z 方向）分布，适用于（a）100 nm、（b）50 nm 和（c）10 nm 器件。在（a）和（b）中未观察到场强饱和，而在 10 nm 器件中，场强似乎趋于饱和。

S3. 界面开关的文献综述

通常认为，靠近界面层的一层负责开关过程 [29, S4, S5]。一些研究团队发现，高阻态和低阻态的电流密度均与面积无关，这暗示开关机制均匀地发生于整个器件面积上 [S6]。这通常通过界面处的电荷俘获引起肖特基势垒高度和宽度变化来解释 [S7, 29, S4, S8, 12, S10] ，以及氧空位的移动 [S8, S10]。另有解释认为势垒分布并未改变，界面变化仅发生在局部区域。此类解释包括：另有研究提出，施加正偏压会生成氧空位，形成隧穿通道，从而产生低阻态；在该状态下，电荷传输主要由隧穿而非热发射主导。施加负偏压则会使大量氧在空位中聚集，从而阻止隧穿并形成高阻态[S11, S12]。

Rodenbücher 等人对高掺杂 Nb:STO 使用局部导电原子力显微镜，证实了纳米级导电可切换团簇的存在。这表明，在这种情况下，开关是一种局部现象，与导电团簇的铌含量高于周围区域有关 [S13]。

最后，Chen 等人使用扫描隧道显微镜和谱学研究了无电极 Nb 掺杂 $SrTiO_3$ 中的电阻开关，证明开关过程中氧迁移会导致电子结构发生变化。施加负电压时，扫描隧道显微镜针尖附近界面处的氧阴离子被氧化成氧分子并离开晶格。与此同时，氧空位扩散到样品中，形成类施主能级，导致导带附近的局域态密度发生畸变，并通过电子跳跃提高载流子浓度，从而增强样品的导电性。施加正电压时，氧阴离子返回样品中，类施主能级的影响减弱，电导率随之降低 [S14]。

尽管存在大量相互矛盾的结果和解释，但已确认的重要因素包括半导体掺杂浓度、电极材料以及界面质量。

参考文献

[S1] D. R. Wolters 和 J. J. van der Schoot。电介质中的电荷俘获动力学。Journal of Applied Physics，58(2):831–837，1985。[S2] R. H. Walden。一种在存在电荷俘获的情况下确定绝缘薄膜高场导电定律的方法。Journal of Journal of Applied Physics，43(3):1178–1186，1972。[S3] E. Mikheev、B. D. Hoskins、D. B. Strukov 和 S. Stemmer。Pt/Nb:$SrTiO_3$ 结中的电阻开关及其抑制。Nature Communications，5(1):1–9，2014。[S4] E. M. Bourim、Y. Kim 和 D.-W. Kim。界面态对Pt/Nb掺杂 $SrTiO_3$ 单晶肖特基结电阻开关行为的影响。ECS固态科学与技术杂志，3(7):N95，2014。[S5] Z. Fan、H. Fan、L. Yang、P. Li、Z. Lu、G. Tian、Z. Huang、Z. Li、J. Yao、Q. Luo等。电荷俘获/去俘获诱发的电阻开关：某些基于Nb:$SrTiO_3$异质结中巨电阻效应的统一机制。材料化学杂志C，5(29):7317–7327，2017。[S6] H. Sim、H. Choi、D. Lee、M. Chang、D. Choi、Y. Son、E.-H. Lee、W. Kim、Y. Park、I.-K. Yoo 等。用于多位非易失性存储器的Pt/$SrTiO_3$ 肖特基结具有优异的电阻开关特性。载于IEEE国际电子器件会议，2005。IEDM技术文摘，第758–761页。IEEE，2005。[S7] M. C. Ni、S. M. Guo、H. F. Tian、Y. G. Zhao 和 J. Q. Li。$SrTiO_{3-\delta}$/Nb掺杂$SrTiO_3$ 异质结中的电阻开关效应。Applied Physics Letters，91(18):183502，2007。[S8] X.-B. Yin、Z.-H. Tan 和 X. Guo。肖特基势垒在$SrTiO_3$电阻开关中的作用：直接实验证据。物理化学化学物理，17(1):134–137，2015。[S9] A. S. Goossens、A. Das 和 T. Banerjee。电场驱动Nb掺杂$SrTiO_3$肖特基界面处的忆阻行为。Journal of Applied Physics，124(15):152102，2018。[S10] J. Li、G. Yang、Y. Wu、W. Zhang 和 C. Jia。Au/Nb: $SrTiO_3$ 肖特基结中的非对称电阻开关效应。固体物理学报（a辑），215(6):1700912，2018。[S11] T. Fujii、M. Kawasaki、A. Sawa、Y. Kawazoe、H. Akoh 和 Y. Tokura。异质外延$SrRuO_3$/$SrTi_{1-x}Nb_xO_3$ ($0.0002 \leq x \leq 0.02$)肖特基结的电学性质和巨电阻效应。Physical Review B，75(16):165101，2007。[S12] D.-J. Seong、D. Lee、M. Pyun、J. Yoon 和 H. Hwang。通过电流-电压和电容-电压测量理解Pt/Ni掺杂$SrTiO_3$ 结的开关机制。日本应用物理学杂志，47(12R):8749，2008。[S13] C. Rodenbücher、W. Speier、G. Bihlmayer、U. Breuer、R. Waser 和 K. Szot。$SrTiO_3$:Nb表面层的团簇状电阻开关。新物理学杂志，15(10):103017，2013。[S14] Y. L. Chen、J. Wang、C. M. Xiong、R. F. Dou、J. Y. Yang 和 J. C. Nie。对Nb掺杂$SrTiO_3$中电阻开关的扫描隧道显微镜/光谱研究。Journal of Applied Physics，112(2):023703，2012。