

忆阻器辐照效应研究现状及发展趋势

王宇翔¹ 汤 戈¹ 肖 尧¹ 赵欣雨¹ 冯 鹏² 胡 伟²

1(成都理工大学 核技术与自动化工程学院 成都 610059)

2(重庆大学 光电工程学院 重庆 400044)

摘要 记忆电阻器(简称忆阻器)作为新型非易失性存储器和人工神经突触器件的有力候选者,在航空航天、火星探测等空间科学与应用领域有着巨大的发展前景。忆阻器的大规模应用,对于其抗辐照性能有异常严苛的要求。为了提高忆阻器的抗辐照能力,需要探究其辐照效应机理,发展一套有效的抗辐照工艺技术。本文在深入调研国内外研究现状的基础上,综述了忆阻器辐照效应的研究现状和趋势,重点针对过渡金属氧化物材料体系的忆阻器辐照效应,提出了现在亟须研究的科学问题和关键技术,从而为忆阻器抗辐照加固与空间应用提供一定的思路。

关键词 忆阻器, 辐照效应, 位移损伤, 电离损伤, 抗辐照加固

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.110001

Research status and development trends of irradiation effects on memristor

WANG Yuxiang¹ TANG Ge¹ XIAO Yao¹ ZHAO Xinyu¹ FENG Peng² HU Wei²

1(College of Nuclear Technology and Automation Engineering, Chengdu University of Technology, Chengdu 610059, China)

2(College of Optoelectronic Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044, China)

Abstract As a strong candidate for the new type of non-volatile memories and artificial synaptic devices, memristor has a huge development prospect in aerospace, Mars exploration and other space science and application fields. Once large-scale application of memristor requires extremely stringent radiation resistance performance for the memristors. In order to improve the radiation resistance of memristors, it is necessary to explore the radiation effect mechanism and develop an effective radiation resistance technology. This paper summarizes the research status and trends of irradiation effects on memristors, describes the mechanism and analysis method of irradiation damage of memristor, and focuses on the irradiation effects of the memristors with transition metal oxide material system. Additionally, the possibility of scientific problems and key technologies are discussed, so as to provide some ideas for the radiation hardening and space application of memristor.

Key words Memristor, Irradiation effect, Displacement damage, Ionization damage, Radiation hardening

忆阻器即记忆电阻器(Memristor),是表示磁通与电荷关系的电路器件。忆阻器最早由蔡少棠^[1]于1971年提出,但直到2008年才由惠普公司Strukov

首次制备出基于TiO₂的阻变随机存储器(Resistive Random Access Memory, RRAM),并率先将RRAM与忆阻器联系在一起^[2],由此拉开了忆阻器研究的

国家自然科学基金(No.12205028)、四川省自然科学基金项目(No.2022NSFSC1235)资助

第一作者: 王宇翔, 男, 1999年出生, 2021年毕业于金陵科技学院, 现为硕士研究生, 研究领域为半导体材料与器件辐照效应

通信作者: 汤戈, E-mail: tangge_cqu@163.com

收稿日期: 2022-07-21, 修回日期: 2022-09-27

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.12205028), Natural Science Foundation of Sichuan Province (No.2022NSFSC1235)

First author: WANG Yuxiang, male, born in 1999, graduated from Jinling Institute of Technology in 2021, master student, focusing on irradiation effects of semiconductor materials and devices

Corresponding author: TANG Ge, E-mail: tangge_cqu@163.com

Received date: 2022-07-21, revised date: 2022-09-27

序幕。此后,基于金属氧化物^[3]、钙钛矿^[4]、非氧化物半导体^[5]等不同材料的忆阻器也迅速被研制出来。忆阻器具有结构简单、功耗低、同传统互补金属氧化物半导体工艺兼容等优势,目前已在逻辑电路^[6-7]、神经网络^[8-9]和存储器^[10-11]等领域上得到应用,并在航空航天等领域展现出广阔的应用前景。值得注意的是,空间环境较为复杂,其中包含高能粒子、宇宙射线、太阳耀斑等各类辐照因素,忆阻器虽对部分辐照因素表现出一定的抗辐射性能,但尚有一系列损伤机制问题有待进一步研究。本文重点围绕忆阻器辐照效应,阐述了国内外研究进展,同时重点针对过渡金属氧化物材料体系的忆阻器,提出了未来面临的主要科学问题和关键技术。

1 忆阻器工作性质与阻变机制

1.1 忆阻器的工作性质

忆阻器具有高、低两个阻值状态。初始状态下忆阻器呈高阻态,为使忆阻器具有正常的忆阻特性,需要对其进行电激活,即施加大电压同时控制电流(防止击穿),此时忆阻器转变为低阻态,这个过程通常称为电铸过程。对电铸后的忆阻器施加合适的电流/电压,可以使其阻值在低阻态和高阻态之间切换。一般将忆阻器由低阻态到高阻态的过程称为复位,由高阻态到低阻态的过程称为置位。复位和置位功能可以使器件在高电阻(0)和低电阻(1)之间变化,从而实现器件的存储功能。

1.2 典型的忆阻器材料体系

常见的忆阻器材料体系主要分为以下几种:二元金属氧化物、钙钛矿材料、固态电解质材料、硫系化合物材料和有机材料等。二元金属氧化物以 TiO_x ^[12]、 TaO_x ^[13]、 AlO_x ^[14]、 WO_x ^[15]、 HfO_x ^[16]材料为代表,结构简单,稳定性出色,同时,在实际的工业生产中,其制造难度、成本、性能等方面较其他材料均占有优势。钙钛矿多元氧化物具有单极型和双极型两种电阻转变形式,常见的钙钛矿材料有 SrTiO_3 ^[17]、 BaTiO_3 ^[18]等,但因其结构复杂、制造难度较高、化学计量难以控制等缺点,在很大程度上阻碍了钙钛矿材料的进一步发展和应用。固态电解质材料因其晶体中的缺陷或其他结构为离子快速迁移提供了通道,因此,也被称为快离子导体,此类忆阻器的器件单元通常包括一个电化学活性电极,固态电解质作为中间功能层,以及一个惰性电极,固态电解质材料的缺点在于电化学稳定性和空气稳定性差。硫系化合物材料也是一种重要的忆阻材料,常见的二元硫系化合物有 Ag_2S ^[19]、 Cu_2S ^[20]等,以及多元硫系化合

物 $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ ^[21]、 AgInSbTe ^[22]等。硫系化合物根据其材料成分、掺杂元素、电极材料等的不同,导致其阻变行为及内部的阻变机理不同,同时,很多硫系化合物作为相变材料,分别在晶态和非晶态展现出良好的忆阻特性,这为多值存储提供了可能性,另外这类材料功耗低、耐久性好,在忆阻器应用上具有较大潜力,不过目前相关辐照效应的研究开展较少。此外,二维过渡金属硫族化合物也可作为电介质层和石墨烯构成全二维材料忆阻器^[23]。有机材料凭借其良好的延展性、价格低廉、环保等优点成为忆阻器材料中的热点材料,常见的有机材料包括聚合物材料^[24-25]、生物高分子材料^[26-27]等。不过,有机材料通常寿命较低、其他性能相较于无机材料略有欠缺,并且起步时间较短,因此还需要更深入地研究和探索。上述忆阻器材料体系中,二元过渡金属氧化物(TiO_x 和 TaO_x)报道最多,也是最接近工业生产指标的材料,故本文重点围绕过渡金属氧化物材料忆阻器辐照效应的国内外研究进展进行归纳与阐述。

1.3 忆阻器的阻变机制

由不同电极材料和阻变层材料构成的忆阻器,其阻变机制各不相同。针对忆阻器的阻变现象,相关研究人员提出了多种阻变机制模型,如导电细丝模型^[28]、热化学机制模型^[29]、离子运输模型^[30]、类铁电铁磁模型^[31]、杂质带模型^[32]、界面势垒调制模型^[33]等。经过长期的理论研究和实验论证,目前被学者普遍认可的两种阻变机制模型分别为导电细丝机制和界面势垒调制机制。

1) 导电细丝机制

导电细丝机制可用来解释大部分忆阻器的阻变过程,并获得了广泛认可。如图1所示,在初始状态下,忆阻器不具有导电细丝,呈高阻态;在外加电压作用下,阻变层发生软击穿现象,形成贯穿两端金属电极的导电细丝,使忆阻器呈低阻态。此外,通过置位和复位过程可以重复形成和破坏导电细丝,从而实现忆阻器阻态的调控^[28]。

2) 势垒调制机制

势垒模型的忆阻器,其两端电极分别制成肖特基接触和欧姆接触。对势垒模型忆阻器施加电场,可以使界面处氧空穴俘获电荷或失去电荷,从而使肖特基势垒宽度 W_d 发生变化。较宽的肖特基势垒可以抑制电子隧穿,此时忆阻器呈现为高阻态,反之,当肖特基势垒宽度变窄,忆阻器表现为低阻态^[34]。此外,也可通过对半导体进行重掺杂的方式,形成电极/半导体界面的欧姆接触,减小势垒宽度,降低忆阻器阻值,图2为势垒调制机制的模型,其中: W 为势垒宽度, ϕ_b 为势垒高度。

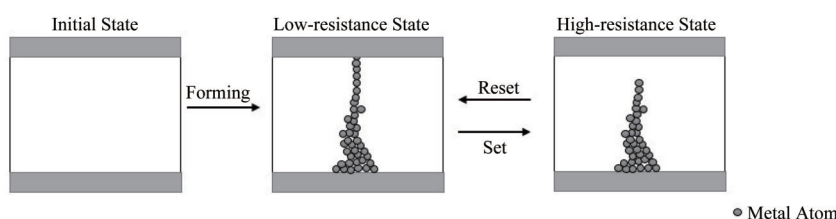


图1 导电细丝机制

Fig.1 Mechanism of filament-type resistive switching

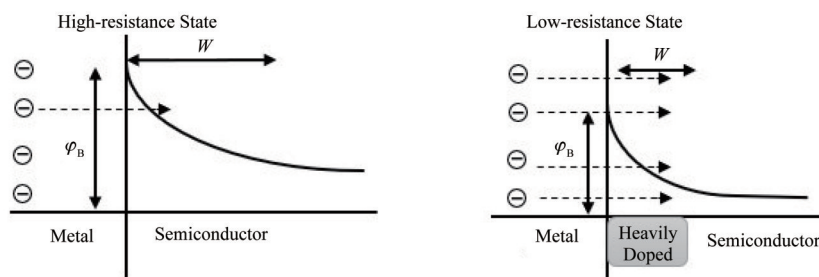


图2 势垒调制机制

Fig.2 Mechanism of barrier modulation

以上两种机制,是较为典型的阻变机理。值得注意的是,对自然界中多数材料进行处理亦可使其拥有阻变特性,但不同材料忆阻器的阻变机理往往表现出较大的差异,遗憾的是当前的研究仍很难给出不同材料阻变特性变化的完备理论。正因如此,有关忆阻器的阻变机理问题及其阻变性能不稳定问题,始终制约着忆阻器的应用与发展,上述问题也成为当前忆阻器研究的热点领域之一。

2 忆阻器辐照损伤机制及分析方法

2.1 忆阻器主要损伤机制

辐照损伤,顾名思义是半导体材料或器件在辐射环境下材料或器件的性能发生改变。目前研究较为深入的损伤机制主要可分为电离损伤^[35]、位移损伤^[36]和表面效应^[37]。常见的(如高能光子对半导体辐照所引发的)辐照损伤主要表现为电离损伤;而当高能中子撞击靶材料时,可通过弹性碰撞使得晶格原子发生位移,产生位移损伤;此外,总剂量效应亦可引发器件表面的氧化层产生电离,并在氧化层中建立正电荷进而引入界面态,形成表面效应。

图3给出了不同辐照对忆阻器造成的损伤机理。电子、离子和光子通常以电离损伤为主,但也可产生位移损伤(非电离),只是微观过程与中子有所区别。中子主要通过弹性碰撞和级联碰撞产生缺陷群;电子和光子则主要通过库仑散射形成均匀分布的点缺陷;离子较为特殊,既可发生电离损伤,也可形成缺陷并产生与中子辐照类似的级联碰撞。因此,不同辐照过程,往往包含电离损伤和位移损伤两

个过程,在研究过程中通常根据电离和非电离的比重,来研究忆阻器的辐照损伤过程,以及设计忆阻器的加固方案。

尽管不同辐照源导致的忆阻器辐照损伤微观过程各不相同,但均可表现在电阻的宏观变化上。譬如:当 γ 射线作用于忆阻器时,会在金属氧化物材料中产生氧离子和氧空穴,同时还会发生氧离子和氧空穴重新排列或复合。当氧空穴的复合大于产生时,会使得忆阻器的导电细丝变细甚至断裂,进而使忆阻器的整体阻值变高^[38],反之忆阻器整体阻值降低。氧空穴的复合与产生速率主要由忆阻器的材料类型和 γ 射线的剂量所决定。当离子辐照作用于忆阻器时,同样也是通过影响导电细丝的产生或断裂来改变忆阻器的阻值状态,忆阻器处于高阻态时,随着辐照剂量的不断增加,其阻值的变化主要取决于被测器件的材料,抑或是离子源的种类^[39]。如能量为1 MeV、通量为 $10^{14} \sim 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ 的 α 粒子辐照,会在 TiO_2 层中产生氧空穴,继而形成导电细丝,并使得所有状态下的阻值均变小。低阻态对于 α 粒子辐照的耐受性很强,随着辐照通量的加强,忆阻器电阻略有下降但仍可保持低阻态。对于高阻态,当受到大剂量的 α 粒子辐照时,器件阻值会切换至低阻态,但通过电压调控仍可复位至高阻态,因此不会对忆阻器造成破坏^[40]。类似地,重离子辐照后,高低阻态的阻值虽均有减小,但辐照后的器件仍具有良好的稳定性和均匀性。随着剂量的不断增大,器件的阻值进一步减小,电导增加^[41],而造成这一现象的原因在于辐照后器件内部产生过量氧空穴,并且形成了导电细丝。

总之,处于不同开关状态(低阻态和高阻态),以及各类辐照(γ 射线、X射线、离子辐照、 α 射线和重离子等)条件下,忆阻器的性能变化主要源于氧离子和氧空穴的产生与复合,进而影响其导电细丝的产生和断裂,在宏观上表现为其阻值的变化。

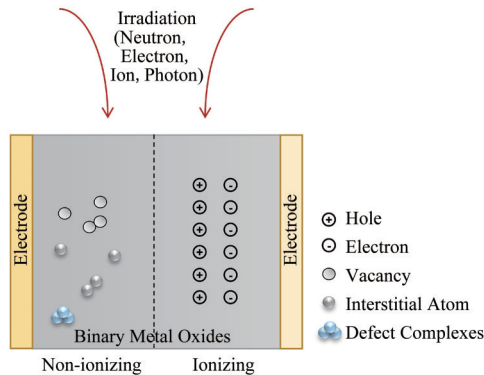


图3 不同辐照对忆阻器造成的损伤
Fig.3 Different radiation damage to memory resistance

2.2 忆阻器的辐照测试方法与仿真分析手段

忆阻器的辐照测试方法一般分为两类:一类是利用各种辐射模拟装置来对忆阻器进行测试并获取参数,实验结果相对准确,也是目前主流的测试手段。不过,这种测试方式需要借助昂贵的设备来支撑。另一类则是利用计算机仿真模拟来实现对忆阻器的辐照模拟实验,随着计算机运算性能的极大提升,仿真实验的精度越来越高,相比于辐射模拟装置成本也有了显著缩减。

采用第一类方法需要借助于各类仪器设备,而其中最关键的是辐射源,如常见的脉冲中子堆、钴源、重离子加速器等。辐照后的器件,一般会针对其材料的力学特性和光学特性,以及器件整体电学性能等进行测试。譬如,借助于金相显微镜(Metalloscope, OM)、扫描电子显微镜(Scanning Electron Microscope, SEM)、X射线衍射仪(X-ray Diffractometer, XRD)、可见-近红外光谱仪、Keithley半导体性能测试仪和 Carry500UV-VIS-NIR 分光光度计等^[42]通用设备进行表征。这些仪器设备从被测器件的表面结构、内部结构、光学性能和电阻率等方面来进行测试并获取相关参数,再利用这些参数结果进行综合分析,最终得到辐照对该器件的影响。

第二类方法为仿真模拟,应用较多的是基于蒙特卡罗方法的SRIM(Stopping and Range of Ions in Matter)仿真软件。SRIM是模拟离子在靶材料中能量损失和分布的软件包,每年均会有上百篇文章或报告运用该软件来进行仿真模拟^[43]。SRIM中所使用的辐射源可以为元素周期表中的元素离子,考虑到宇宙射线中 α 射线和质子占99%,所以辐射源多

设置为质子(氦离子)和 α 粒子,且设置单个粒子能量一般在10~110 keV之间。辐射源从不同方向和位置对器件产生的影响也十分重要,以钛氧化物(TiO_2)忆阻器为例,根据器件结构分别从电极和杂质层的位置,以 0° 、 30° 、 60° 和 80° 的入射角度进行入射,模拟结果显示:从电极侧入射角度为 60° 时,器件会产生最多的氧空穴;从有效区域入射角度为 80° 时,器件会产生最多的氧空穴^[44]。对于电子、光子和中子,则可借助于MCNP(Monte Carlo N Particle Transport Code)^[45]和JMCT(J Monte Carlo Transport code)^[46]软件,模拟上述粒子在金属氧化物中的能量沉积和粒子输运问题。

3 各类辐照因素对忆阻器的影响研究

忆阻器凭借其开关转换快、非易失性等特性,已在多个领域上得到了应用。同时,在航空航天,火星探测等空间应用领域展现出了巨大的发展前景,引发了研究人员广泛的兴趣。在此之中,基于过渡金属氧化物材料体系的忆阻器结构简单,性能出色尤其受到重视,本文将详细介绍空间中各种辐照对过渡金属氧化物忆阻器的影响,以展现其出色的抗辐照性能。与此同时,因氧化物基忆阻器中存在不可避免的材料缺陷,在一定程度上限制了其性能和应用,可喜的是,有研究发现对相关材料施加辐照会使忆阻器性能得到改善,此可为日后发展高可靠性的忆阻器提供一定的技术支撑。

3.1 高能光子辐照忆阻器

高能光子主要通过电离效应对忆阻器产生作用。2012年桑迪亚国家实验室Marinella等^[47-48]研究了X射线对 TaO_x 忆阻器的影响。当X射线以 $1.667 \text{ krad} \cdot \text{s}^{-1}$ 剂量率累计辐照至10 krad后,所有测试器件均出现了不同程度的电阻下降。经过进一步测试发现,忆阻器阻值虽有下降,但并不影响其功能。此后,桑迪亚实验室通过大量实验证明,X射线和 γ 射线辐照除产生短暂的电阻变化外,均不会对忆阻器产生显著影响^[49-51],辐照过后器件仍可正常工作。2014年,国防科技大学池雅庆等^[52]对 TiO_2 忆阻器做了总剂量为100 krad(Si)的 γ 辐照实验,结果显示,辐照后忆阻器高阻态和低阻态的阻值虽均有降低,但两者的电阻差值为48.6 k Ω ,与辐照前的48.9 k Ω 相比几乎没有变化,因此,并不影响其数据存储和读/写操作。

2014~2015年,桑迪亚国家实验室McLain等进一步针对 TaO_x 忆阻器开展了大量实验研究^[50, 53-54],不同于以往总剂量效应的研究,此次研究首次对剂

量率效应进行了详细分析^[50],表1为相关实验结果。如表1所示,在较高总剂量但剂量率较低条件下,被测器件无法转换状态或出现明显的电阻变化;相反在较低总剂量但剂量率较高条件下,器件则会转换

状态,这表明忆阻器电阻更易受到高剂量率的影响,换言之剂量率是引起电阻变化的主要原因,而非总剂量。

表1 不同剂量率暴露前后 TaO_x 忆阻器状态与剂量关系
Table 1 The pre- and post-exposure TaO_x state versus dose for different dose rates

剂量率 Dose rate / rad(Si)·s ⁻¹	剂量率辐照暴露前后 Pre- and post-exposure	总剂量 Total ionizing dose / rad(Si)	器件状态 Device state
1×10 ⁸	暴露前 Pre-exposure	10 ¹ ~10 ⁴	高阻态 High-resistance state
	暴露后 Post-exposure	10 ¹ ~10 ⁴	高阻态 High-resistance state
4×10 ⁸	暴露前 Pre-exposure	10 ¹ ~10 ³	高阻态 High-resistance state
		10 ⁴	低阻态 Low-resistance state
	暴露后 Post-exposure	10 ¹	高阻态 High-resistance state
		10 ² ~10 ⁴	低阻态 Low-resistance state

3.2 电子辐照忆阻器

电子辐照与光子辐照类似,均是通过电离效应影响忆阻器。表2总结了电子辐照对忆阻器的影响,桑迪亚国家实验室研究团队分别使用20 MeV高

能电子^[50]和70 keV中能电子^[55]对TaO_x忆阻器进行辐照实验,其结果显示,这两种辐照均会改变忆阻器阻值,但忆阻器的复位和置位过程均可正常进行,忆阻功能不受影响,这说明忆阻器对电子辐照也有良好的抗辐照性能。

表2 电子辐照对不同类型忆阻器的影响
Table 2 Effects of electron irradiation on different types of memristors

忆阻器类型 Memristor type	电子能量 Electronic energy	通量 Fluence	结论 Conclusion	文献 References
TaO _x	20 MeV	5.0×10 ⁷ ~4.7×10 ⁸ rad(Si)·s ⁻¹	忆阻器功能正常 Memristor function is normal	[50, 53]
TaO _x	70 keV	1.0×10 ⁵ ~1.8×10 ⁷ rad(Si)·s ⁻¹	忆阻器功能正常 Memristor function is normal	[55]
PdSe ₂	—	0~2 500 mC·cm ⁻²	适当辐照可以提高忆阻器的稳定性 Proper irradiation can improve the stability of memristor	[56]
ReS ₂	—	8 000 μC·cm ⁻² , 6 000 μC·cm ⁻² , 4 000 μC·cm ⁻² , 0 μC·cm ⁻²	辐照使器件产生S空位,从而具有电阻开关特性 Irradiation makes the device produce sulfur vacancies, so it has switching characteristics	[57]
BaTiO ₃	100 kV	7.5×10 ¹⁵ e·cm ⁻²	控制辐照可以使铁电薄膜具有忆阻特性 Controlled electron beam radiation, ferroelectric film of BaTiO ₃ can be turned into a memristor	[58]

尽管过渡金属氧化物忆阻器显示出良好的抗辐照性能,但实际制备过程中,忆阻器并不能展现出其理想的器件特性。原因在于:氧化物基忆阻器传导通道的形成主要依赖于随机氧空位迁移,但这些氧化物薄膜往往是非晶或多晶的,存在不可避免的晶格缺陷和固有的晶界,导致氧空位分布不均匀,进而氧空位通道的形成存在着较大的随机性,最终同一薄膜上不同忆阻器单元的性能出现较大偏差,整体性能表现不稳定。

近年来,研究人员对氧化物基以外的材料体系开展了进一步的研究,发现对此类忆阻器施加辐照

可有效改善其性能,譬如对于二维材料忆阻器,施加电子辐照可使PdSe₂忆阻器产生开关特性,并且在PdSe₂层中形成异相晶界,从而辅助导电细丝的形成^[56];电子辐照ReS₂忆阻器则可产生S空位,使其势垒高度发生变化,通过势垒调制机制改变电阻,避免了导电细丝随机生成影响器件特性^[57]。对于铁电化合物(如BaTiO₃)忆阻器,电子辐照可以控制氧空位的浓度,使导电细丝的形成更稳定^[58]。

3.3 离子辐照忆阻器

在以往的研究中,已经证实TiO₂忆阻器对铋(Bi)离子和α离子辐照具有良好的抗辐照性能^[37, 40]。

只有当离子辐照超过一定阈值时,离子辐照才会使忆阻器电阻发生退化^[39]。表3给出了不同离子辐照对忆阻器的影响。其中,桑迪亚实验室Hughart团队通过进一步的研究指出,通量低于 10^{10} cm^{-2} 的800 keV 钽(Ta)离子或通量低于 10^{11} cm^{-2} 的28 MeV 硅(Si)离子引起的位移损伤均不会导致器件电阻发生退化^[49]。此外,对 TiO_2 忆阻器和 TaO_x 忆阻器施加相同的离子辐照, TiO_2 忆阻器展现出了更稳定的性能,其电阻不易发生改变^[55]。这归因于 TiO_2 忆阻器中含有大量固有缺陷,因此,离子辐照产生的位移效

应对器件的影响并不显著^[59]。

在 高 能 离 子 辐 照 实 验 中,941 MeV 铋(Bi)离子虽会对 TiO_2 忆阻器产生一定的位移损伤,但因器件的固有缺陷远大于位移损伤产生的缺陷,故辐照对其功能不造成影响^[37];在另一项实验中,Rubi等^[60]使用2 MeV 高能氧(O)离子对锰氧化物基忆阻器件进行辐照,结果显示辐照和未辐照器件之间的介电击穿电压没有显著差异,由此也可看出,忆阻器对高能离子辐照具有良好的抗辐照特性,能够满足绝大多数实际辐射环境的应用需求。

表3 离子辐照对不同类型忆阻器的影响
Table 3 Effects of ion irradiation on different types of memristors

忆阻器类型 Memristor type	离子类型 Ion type	能量 Energy	通量 Fluence	结论 Conclusion	文献 References
TiO_2	Bi 离子 Bi ions	941 MeV	23 Mrad(Si)	忆阻器功能正常 Memristor function is normal	[37, 39, 40, 49, 55]
	Si 离子 Si ions	800 keV	$0 \sim 7.5 \times 10^{12} \text{ ions} \cdot \text{cm}^{-2}$		
	Ta 离子 Ta ions	800 keV	$10^9 \sim 10^{14} \text{ ions} \cdot \text{cm}^{-2}$		
	Si 离子 Si ions	28 MeV	$1 \times 10^7 \sim 1 \times 10^9 \text{ rad(Si)}$		
	α 粒子 α particle	1 MeV	$10^{12} \sim 10^{15} \text{ ions} \cdot \text{cm}^{-2}$		
TaO_x	Si 离子 Si ions	28 MeV	$1 \times 10^7 \sim 1 \times 10^9 \text{ rad(Si)}$	忆阻器功能正常	[49, 55]
	Ta 离子 Ta ions	800 keV	$10^9 \sim 10^{14} \text{ ions} \cdot \text{cm}^{-2}$	Memristor function is normal	
$\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$	O 离子 O ions	2 MeV	$2 \times 10^{14} \text{ ions} \cdot \text{cm}^{-2}$	忆阻器功能正常 Memristor function is normal	[60]
TiO_2 钙钛矿氧化物 Perovskite oxide memristors	碳离子射线 Carbon ion beam	100 keV 10 keV	—	辐照导致器件中产生氧空穴,当氧离子到达电极,会产生氧气造成忆阻器功能破坏 Radiation induced appearance of oxygen vacancies, if the displaced oxygen ions reach the platinum electrodes, they can form O_2 gas and cause permanent disruption of memristor functionality	[61–62] [63]
	硼离子束 B ion beam	50 keV	—		
	磷离子束 P ion beam	100 keV			
	氮离子束 N ion beam	100 keV			
	氖离子束 Ne ion beam	100 keV			
	碳离子束 C ion beam	100 keV			
	Ar 离子 Ar ions	离子源 Ion source	$4.97 \times 10^{18} \text{ ions} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ (3 min, 5 min, 10 min)		
		电压 300 V Voltage 300 V 电流 10 mA Electric current 10 mA			
MoO_x	Ar 离子 Ar ions	100 eV 80 keV 80 eV	离子源 KDC40 Ion source KDC40 $4.97 \times 10^{18} \text{ ions} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$	辐照后 MoO_x 忆阻器稳定性提升 Stability improvement of MoO_x memristor after irradiation	[64]
				辐照后 WO_x 忆阻器的能耗降低 The energy consumption of WO_x memristor is reduced after irradiation	
LiNbO_3	Ar 离子 Ar ions	100 eV 80 keV 80 eV	离子源 KDC40 Ion source KDC40 $4.97 \times 10^{18} \text{ ions} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$	辐照可以改善 LiNbO_3 性能 Irradiation can improve the properties of LiNbO_3 thin films	[66] [67–68] [69]

值得注意的是,离子辐照并不是能量越低,对忆阻器性能影响越小。某些低能离子辐照,在介质层中产生的氧离子也可使忆阻器破坏。Vujisic 等^[61–62]使用 100 keV 碳(C)离子对 TiO_2 忆阻器进行辐照时

发现,入射离子会在介质层中产生氧离子并成为间隙粒子,当外加电场足够大时,氧离子可能会迁移到电极处,产生氧气并使界面变形,使忆阻器功能永久破坏。在钙钛矿氧化物忆阻器的实验中也得到了相

同的结论^[63]。

另一方面,离子辐照也可用于忆阻器的性能提升。在对过渡金属氧化物忆阻器的研究中,Ar离子辐照可以使 MoO_x 忆阻器和 WO_x 忆阻器的开关比增大,提升稳定性和降低能耗^[64]。与非晶或多晶氧化物基忆阻器相比,单晶氧化物薄膜忆阻器凭借其出色的稳定性、再现性和保持性^[65],逐渐成为近年来忆阻器研究的热门材料。其中,最为典型的如 LiNbO_3 薄膜,其晶格排列有序避免了氧空位通道随机生成引起的不稳定性。目前对于 LiNbO_3 忆阻器已开展大量实验研究^[66-69],结果表明使用Ar离子辐照能够减少氧化物薄膜的厚度、调节氧空位的数量,从而降低电铸电压和操作电压,以此减少忆阻器能耗。上述方法对于非晶态 HfO_2 薄膜同样有效^[70]。整体而言,通过Ar离子辐照改性,可以在一定程度上提升忆阻器性能,拓展应用场景。

3.4 中子辐照忆阻器

中子来源于核裂变、核聚变或其他核反应,相比其他辐照源放射性更强。通常情况下,研究人员很难在空间或反应堆辐射环境下直接测试这些忆阻器,并且高能、高通量的中子不易调控,给相关实验带来了极大的困难。因此,对于中子辐照的研究大多采用仿真实验进行。

中子辐照主要使忆阻器产生位移损伤,DeIonno等^[59,71]模拟了1 MeV能量,通量为 $1 \times 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}$ 和 $3 \times 10^{14} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}$ 快中子辐照对 TiO_2 忆阻器造成的位移损伤,根据结果估计出这两种通量的快中子对 TiO_2 层仅产生0.000 6%和0.001 7%的移位,且未观察到忆阻器电学特性的显著变化。此外,Belov等^[72]利用中能离子模拟1 MeV快中子对 SiO_2 忆阻器的辐照研究中,也得到了类似结论。

为进一步研究高能中子辐照的影响,Taggart^[73]和Ye等^[74]使用14 MeV特快中子分别对导电桥接随机存取存储器(Conductive-Bridging Random Access Memory, CBRAM)和电化学金属存储器(Electro-Chemical Metallization Memory, ECM)进行实验。在CBRAM实验中发现,随着中子注量增加,器件高、低阻态的阻值比越来越接近1,当注量增加到 $3.19 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时,高低阻态电阻相等,并且无法恢复,器件功能损坏^[73]。而在ECM实验中发现,中子辐照对低阻态设备几乎没有影响,而对高阻态器件仅有轻微的参数漂移,设备仍可正常工作^[74]。

不仅如此,在中子辐照过程中也发现了与剂量增强类似的效应,即使用低能量的中子辐照时,忆阻器性能更易受到影响。2017年,Vujović等^[75]在对 TiO_2 忆阻器使用0.01~1 MeV的中子进行仿真实验

时发现,在中子能量较低时,以非电离能量损失(Non-ionizing Energy Loss, NIEL)为主;而当入射中子能量较高时,高能初级粒子撞出原子和置换离子主要通过电离损失能量(Linear Energy Loss, LET),并因此将其大部分能量从氧化物中带走并进入铂电极。对于氧化物,尤其是 TiO_2 层,对非电离能量沉积尤其敏感,故此类忆阻器表现出对能量低于0.1 MeV的中子辐照更为敏感。

由以上的相关实验可以看出,高能中子辐照对忆阻器的影响很小,但由于氧化物区域电离和非电离能量的沉积,会使忆阻器在低能中子辐照环境中的应用更容易受到限制,由此有关不同能量中子,尤其是低能中子对忆阻器的辐照损伤值得更进一步的研究。

3.5 各类辐照对忆阻器影响小结

通过以上各类辐照实验和仿真不难发现,不同辐照通过位移效应或电离效应对过渡金属氧化物产生影响,并且均表现为电阻的变化;而电阻的变化大小则由器件中氧空位的浓度所决定,此过程通常不会破坏器件结构,且辐照过后忆阻读写功能正常。正因如此,基于过渡金属氧化物体系的忆阻器展现出了良好的抗辐照性能。

此外,辐照也会在材料中引入新的缺陷,这一缺陷体现在金属氧化物中同样也是氧空位的形式。利用辐照这一特性,可以改善忆阻器的性能。现有文献表明,电子辐照和离子辐照均可使忆阻器改性,其中电子辐照通过在二维材料中形成异相晶界或是产生缺陷,改善其开关特性。离子辐照可以改变薄膜厚度,控制缺陷浓度,从而降低器件能耗,提升器件稳定性。

总之,忆阻器是当前极具应用前景的下一代非易失性存储器之一,尽管已展现出许多优秀的性能,但也面临着众多挑战,如忆阻器的阻变机理不明确和其阻变性能不稳定,如何消除忆阻器的负置位行为引起的开关参数可靠性和均匀性下降^[76],如何解决忆阻器开关电压弥散性问题以及克服忆阻器在集成电路中寄生电流的问题^[77],同时在忆阻器工艺制备过程中,如何采用掺杂的方式来提升其性能^[78],亦或是通过离子辐照的方式改善其性能,仍是当前亟须研究的科学问题和关键技术。

4 忆阻器辐照效应研究发展趋势

结合目前忆阻器辐照效应的研究结果,可以凝练出以下5个未来忆阻器在辐照领域的发展趋势:

1)针对不同材料体系的辐照效应研究。当前针

对过渡金属氧化物忆阻器辐照效应已开展较为广泛的研究,然而大多数新型材料,譬如钙钛矿结构的铁电和压电材料、固态电解质材料、二维过渡金属硫族化合物和有机材料等材料体系的忆阻器还有待开展辐照相关的进一步研究。

2)发展新型辐照模拟技术。传统的辐照模拟装置,普遍存在费用昂贵、测试周期长、联用困难的问题,目前新型辐照模拟技术,如采用重离子模拟中子辐照、激光模拟电离辐照在忆阻器辐照领域具有一定的发展潜力。

3)针对忆阻器瞬态电离辐照效应的研究。从目前的调研结果来看,电离辐照效应几乎均集中于总剂量效应,虽然有文献指出剂量率大小会对忆阻器宏观电阻特性产生影响,但所有测试均采用离线测试。倘若要更深入地研究电离效应在时域上对忆阻器的影响,则需要采用在线的方式,开展瞬态电离辐照效应的研究。

4)低能粒子在电介质层中的能量沉积。已有文献指出,低能中子对忆阻器造成的辐照损伤相较高能中子会更加严重。对于特定材料的忆阻器,光子、电子、离子是否也会产生类似的现象,有待进一步研究。

5)位移和电离协同损伤过程对忆阻器的影响。一方面,高能粒子辐照忆阻器时,位移损伤和电离损伤均会发生;另一方面,真实的辐照环境往往包含多种辐射因素,导致在忆阻器中同时产生位移损伤和电离损伤。因此,研究位移和电离协同损伤过程对忆阻器的影响,可以推动忆阻器在真实辐照环境中的应用。

5 结语

随着人工智能(Artificial Intelligence, AI)的大力发展, AI已在航空航天中得到了广泛应用,而忆阻器作为硬件实现人工神经网络突触的最好方式,无疑有着巨大的发展前景。无论是空间站中的管理调配,还是宇宙飞船上的控制、数据处理、故障损坏判断、自动导航和自我维修等都离不开AI技术,更不可缺少高可靠忆阻器的支撑。因此,研究和提高忆阻器在空间辐射环境下的可靠性,必将推动忆阻器在航空航天领域的应用。

本文重点围绕忆阻器阻变层材料中的过渡金属氧化物,综述了该材料体系忆阻器的辐照效应。结合国内外相关研究进展进行了分析与展望,总结了忆阻器在高能光子、电子、离子、中子辐照下的实验结果。诚然,忆阻器天然具备极高的抗辐照性能,无论是面对高剂量率、总剂量、电子、离子和中子辐照,

均表现出显著的抗辐照特性。同时,国际上已有不少文献验证了各种类型忆阻器的抗辐照性能,但有关不同材料体系忆阻器本身的辐照损伤机制尚不明确,同时在线测试实验手段和瞬态实验结果还有待发展和补充。此外,在多种辐射因素耦合作用下忆阻器的影响规律、抗辐照加固方法等方面需要更进一步地研究。本文可为忆阻器在特种环境中的应用提供必要的理论和技术支撑,而且对于追踪国外忆阻器辐射效应发展前沿、推动我国忆阻器辐射效应研究迈上新台阶具有一定的理论和现实意义。

作者贡献声明 王宇翔:提出编写思路,并负责论文起草、修改的主要工作;汤戈:负责审核、把关论文的科学性、严谨性;肖尧、赵欣雨:负责搜集参考文献,以及起草、修改论文的部分内容;冯鹏、胡伟:负责指导论文编写。

参考文献

- 1 Chua L. Memristor-the missing circuit element[J]. IEEE Transactions on Circuit Theory, 1971, **18**(5): 507 - 519. DOI: 10.1109/TCT.1971.1083337.
- 2 Strukov D B, Snider G S, Stewart D R, *et al.* The missing memristor found[J]. Nature, 2008, **453**(7191): 80 - 83. DOI: 10.1038/nature06932.
- 3 Jang J T, Min J, Hwang Y, *et al.* Digital and analog switching characteristics of InGaZnO memristor depending on top electrode material for neuromorphic system[J]. IEEE Access, 2020, **8**: 192304 - 192311. DOI: 10.1109/ACCESS.2020.3032188.
- 4 Schmitt R. Defect and structure design of oxides for valence-change resistive switching devices[D]. Zurich: ETH Zurich, 2017.
- 5 Xu R J, Jang H, Lee M H, *et al.* Vertical MoS₂ double-layer memristor with electrochemical metallization as an atomic-scale synapse with switching thresholds approaching 100 mV[J]. Nano Letters, 2019, **19**(4): 2411 - 2417. DOI: 10.1021/acs.nanolett.8b05140.
- 6 Xu N, Park T, Yoon K J, *et al.* In-memory stateful logic computing using memristors: gate, calculation, and application[J]. Physica Status Solidi (RRL) - Rapid Research Letters, 2021, **15**(9): 2100208. DOI: 10.1002/pssr.202100208.
- 7 Luo L, Dong Z K, Duan S K, *et al.* Memristor - based stateful logic gates for multi - functional logic circuit[J]. IET Circuits, Devices & Systems, 2020, **14**(6): 811 - 818. DOI: 10.1049/iet-cds.2019.0422.
- 8 Yao P, Wu H Q, Gao B, *et al.* Fully hardware-

- implemented memristor convolutional neural network[J]. *Nature*, 2020, **577**(7792): 641 – 646. DOI: 10.1038/s41586-020-1942-4.
- 9 Lin P, Li C, Wang Z R, *et al.* Three-dimensional memristor circuits as complex neural networks[J]. *Nature Electronics*, 2020, **3**(4): 225 – 232. DOI: 10.1038/s41928-020-0397-9.
- 10 Li C, Graves C E, Sheng X, *et al.* Analog content-addressable memories with memristors[J]. *Nature Communications*, 2020, **11**: 1638. DOI: 10.1038/s41467-020-15254-4.
- 11 Wan W E, Kubendran R, Schaefer C, *et al.* A compute-in-memory chip based on resistive random-access memory [J]. *Nature*, 2022, **608**(7923): 504 – 512. DOI: 10.1038/s41586-022-04992-8.
- 12 Zaffora A, di Franco F, Macaluso R, *et al.* TiO₂ in memristors and resistive random access memory devices [M]. *Titanium Dioxide (TiO₂) and Its Applications*. Amsterdam: Elsevier, 2021: 507 – 526. DOI: 10.1016/b978-0-12-819960-2.00020-1.
- 13 Rajasekaran S, Simanjuntak F M, Panda D, *et al.* Fast, highly flexible, and transparent TaO_x-based environmentally robust memristors for wearable and aerospace applications[J]. *ACS Applied Electronic Materials*, 2020, **2**(10): 3131 – 3140. DOI: 10.1021/acsaelm.0c00441.
- 14 Liu C, Wang L G, Cao Y Q, *et al.* Synaptic functions and a memristive mechanism on Pt/AlO_x/HfO_x/TiN bilayer-structure memristors[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2020, **53**(3): 035302. DOI: 10.1088/1361-6463/ab4e70.
- 15 Liu Y H, Wang Y S, Wang C X, *et al.* Improvement on synaptic properties of WO_x-based memristor by doping Ti into WO_x[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2021, **54**(45): 455107. DOI: 10.1088/1361-6463/ac128d.
- 16 Wu L, Liu H X, Li J B, *et al.* A multi-level memristor based on Al-doped HfO₂ thin film[J]. *Nanoscale Research Letters*, 2019, **14**(1): 177. DOI: 10.1186/s11671-019-3015-x.
- 17 Tang H, Tang X G, Jiang Y P, *et al.* Bipolar resistive switching characteristics of amorphous SrTiO₃ thin films prepared by the Sol-gel process[J]. *Journal of Asian Ceramic Societies*, 2019, **7**(3): 298 – 305. DOI: 10.1080/21870764.2019.1625499.
- 18 Zhang Q Q, Li X G, Zhu J. Direct observation of interface-dependent multidomain state in the BaTiO₃ tunnel barrier of a multiferroic tunnel junction memristor [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2021, **13**(36): 43641 – 43647. DOI: 10.1021/acsami.1c11661.
- 19 Mou N I, Tabib-Azar M. Photoreduction of Ag⁺ in Ag/Ag₂S/Au memristor[J]. *Applied Surface Science*, 2015, **340**: 138 – 142. DOI: 10.1016/j.apsusc.2015.02.038.
- 20 Chen L, Xia Y D, Liang X F, *et al.* Nonvolatile memory devices with Cu₂S and Cu-Pc bilayered films[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, **91**(7): 073511. DOI: 10.1063/1.2771064.
- 21 Zhai F X, Hao Y Q, Liu N N, *et al.* Bipolar resistive switching of Ge₂Sb₂Te₃ material[C]. *Proceeding SPIE 11209, Eleventh International Conference on Information Optics and Photonics (CIOP 2019)*, 2019, **11209**: 777 – 781. DOI: 10.1117/12.2548815.
- 22 Zhang J J, Sun H J, Li Y, *et al.* AgInSbTe memristor with gradual resistance tuning[J]. *Applied Physics Letters*, 2013, **102**(18): 183513. DOI: 10.1063/1.4804983.
- 23 Wang M, Cai S H, Pan C, *et al.* Robust memristors based on layered two-dimensional materials[J]. *Nature Electronics*, 2018, **1**(2): 130 – 136. DOI: 10.1038/s41928-018-0021-4.
- 24 Bhansali U S, Khan M A, Cha D, *et al.* Metal-free, single-polymer device exhibits resistive memory effect[J]. *ACS Nano*, 2013, **7**(12): 10518 – 10524. DOI: 10.1021/nn403873c.
- 25 Zhou Y, Han S T, Yan Y, *et al.* Ultra-flexible nonvolatile memory based on donor-acceptor diketopyrrolopyrrole polymer blends[J]. *Scientific Reports*, 2015, **5**: 10683. DOI: 10.1038/srep10683.
- 26 Wang H, Meng F B, Zhu B W, *et al.* Resistive switching memory devices based on proteins[J]. *Advanced Materials*, 2015, **27**(46): 7670 – 7676. DOI: 10.1002/adma.201405728.
- 27 Park Y, Lee J S. Flexible multistate data storage devices fabricated using natural lignin at room temperature[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2017, **9**(7): 6207 – 6212. DOI: 10.1021/acsami.6b14566.
- 28 Sawa A. Resistive switching in transition metal oxides[J]. *Materials Today*, 2008, **11**(6): 28 – 36. DOI: 10.1016/S1369-7021(08)70119-6.
- 29 Seo S, Lee M J, Seo D H, *et al.* Reproducible resistance switching in polycrystalline NiO films[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, **85**(23): 5655 – 5657. DOI: 10.1063/1.1831560.
- 30 Rossel C, Meijer G I, Brémaud D, *et al.* Electrical current

- distribution across a metal-insulator-metal structure during bistable switching[J]. *Journal of Applied Physics*, 2001, **90**(6): 2892 – 2898. DOI: 10.1063/1.1389522.
- 31 Rodríguez Contreras J, Kohlstedt H, Poppe U, *et al.* Resistive switching in metal-ferroelectric-metal junctions [J]. *Applied Physics Letters*, 2003, **83**(22): 4595 – 4597. DOI: 10.1063/1.1627944.
 - 32 Beck A, Bednorz J G, Gerber C, *et al.* Reproducible switching effect in thin oxide films for memory applications[J]. *Applied Physics Letters*, 2000, **77**(1): 139 – 141. DOI: 10.1063/1.126902.
 - 33 Tsai S C, Lo H Y, Huang C Y, *et al.* Structural analysis and performance in a dual-mechanism conductive filament memristor[J]. *Advanced Electronic Materials*, 2021, **7**(10): 2170047. DOI: 10.1002/aelm.202170047.
 - 34 Sim H, Choi H, Lee D, *et al.* Excellent resistance switching characteristics of Pt/SrTiO₃ Schottky junction for multi-bit nonvolatile memory application[C]//IEEE International Electron Devices Meeting. IEDM Technical Digest. Washington, DC, USA. IEEE, 2005: 758 – 761. DOI: 10.1109/IEDM.2005.1609464.
 - 35 Wang Y, Lv H B, Wang W, *et al.* Highly stable radiation-hardened resistive-switching memory[J]. *IEEE Electron Device Letters*, 2010, **31**(12): 1470 – 1472. DOI: 10.1109/LED.2010.2081340.
 - 36 Prinzie J, Simanjuntak F M, Leroux P, *et al.* Low-power electronic technologies for harsh radiation environments [J]. *Nature Electronics*, 2021, **4**(4): 243 – 253. DOI: 10.1038/s41928-021-00562-4.
 - 37 Tong W M, Yang J J, Kuekes P J, *et al.* Radiation hardness of TiO₂ memristive junctions[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2010, **57**(3): 1640 – 1643. DOI: 10.1109/TNS.2010.2045768.
 - 38 顾野. 忆阻器件的特性与电路应用研究[D]. 成都: 电子科技大学, 2015.
GU Ye. Research on memristor device characteristics and circuit applications[D]. Chengdu: University of Electronic Science and Technology of China, 2015.
 - 39 Hughart D R, Dalton S M, Mickel P R, *et al.* Total ionizing dose and displacement damage effects on TaO_x memristive memories[C]. IEEE Aerospace Conference. Big Sky, MT, USA. IEEE, 2013: 1 – 10. DOI: 10.1109/AERO.2013.6497381.
 - 40 Barnaby H J, Malley S, Land M, *et al.* Impact of alpha particles on the electrical characteristics of TiO₂ memristors[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2011, **58**(6): 2838 – 2844. DOI: 10.1109/TNS. 2011. 2168827.
 - 41 Wang J J, Ren D L, Zhang Z C, *et al.* A radiation-hardening Ta/Ta₂O_{5-x}/Al₂O₃/InGaZnO₄ memristor for harsh electronics[J]. *Applied Physics Letters*, 2018, **113**(12): 122907. DOI: 10.1063/1.5045649.
 - 42 Rafik H, Izerrouken M. Radiation damage induced by reactor neutrons in nano-anatase TiO₂ thin film[J]. *Radiation Physics and Chemistry*, 2020, **177**: 109114. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2020.109114.
 - 43 Ziegler J F, Ziegler M D, Biersack J P. SRIM - the stopping and range of ions in matter (2010)[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2010, **268** (11 – 12): 1818 – 1823. DOI: 10.1016/j. nimb. 2010. 02.091.
 - 44 刘海军, 田晓波, 李清江, 等. 基于蒙特卡罗方法的钛氧化 物忆阻器辐射损伤研究[J]. *物理学报*, 2015, **64**(7): 078401.
LIU Haijun, TIAN Xiaobo, LI Qingjiang, *et al.* Research on radiation damage in titanium oxide memristors by Monte Carlo method[J]. *Acta Physica Sinica*, 2015, **64**(7): 078401.
 - 45 Pozzi S A, Padovani E, Marseguerra M. MCNP-PoliMi: a Monte-Carlo code for correlation measurements[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2003, **513**(3): 550 – 558. DOI: 10.1016/j.nima.2003.06.012.
 - 46 李刚, 张宝印, 邓力, 等. 蒙特卡罗粒子输运程序JMCT 研制[J]. *强激光与粒子束*, 2013, **25**(1): 158 – 162. DOI: 10.3788/HPLPB20132501.0178.
LI Gang, ZHANG Baoyin, DENG Li, *et al.* Development of Monte Carlo particle transport code JMCT[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2013, **25**(1): 158 – 162. DOI: 10.3788/HPLPB20132501.0178.
 - 47 Marinella M, Dodd P E, Shaneyfelt M R, *et al.* Effect of X-ray and proton radiation on the electrical characteristics of TaO_x memristors[R]. Albuquerque, NM (United States): Sandia National Laboratory, 2012.
 - 48 Marinella M J, Dalton S M, Mickel P R, *et al.* Initial assessment of the effects of radiation on the electrical characteristics of TaO_x memristive memories[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2012, **59**(6): 2987 – 2994. DOI: 10.1109/TNS.2012.2224377.
 - 49 Hughart D R, Lohn A J, Mickel P R, *et al.* A comparison

- of the radiation response of TaO_x and TiO₂ memristors[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2013, **60**(6): 4512 – 4519. DOI: 10.1109/TNS.2013.2285516.
- 50 McLain M L, Hjalmarson H P, Sheridan T J, *et al.* The susceptibility of TaO_x-based memristors to high dose rate ionizing radiation and total ionizing dose[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2014, **61**(6): 2997 – 3004. DOI: 10.1109/TNS.2014.2364521.
 - 51 McLain M, Hughart D, Hanson D, *et al.* Effects of ionizing radiation on TaO_x-based memristive devices[C]// IEEE Aerospace Conference. Big Sky, MT, USA. IEEE, 2014: 1 – 9. DOI: 10.1109/AERO.2014.6836501.
 - 52 Chi Y Q, Liu R R, Tang Z S, *et al.* Total ionizing dose effect on low on/off switching ratio TiO₂ memristive memories[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2014, **61**(4): 1889 – 1893. DOI: 10.1109/TNS. 2014. 2318298.
 - 53 McLain M L, McDonald J K, Sheridan T J, *et al.* The susceptibility of TaO_x-based memristive devices to continuous and pulsed ionizing radiation[R]. Albuquerque, NM (United States): Sandia National Laboratory, 2014.
 - 54 McLain M L, Marinella M J. Overview of the radiation response of anion-based memristive devices[C]//IEEE Aerospace Conference. Big Sky, MT, USA. IEEE, 2015: 1 – 11. DOI: 10.1109/AERO.2015.7119304.
 - 55 Hughart D R, Lohn A J, Mickel P R, *et al.* Radiation-induced resistance changes in TaO_x and TiO₂ memristors [C]//IEEE Aerospace Conference. Big Sky, MT, USA. IEEE, 2014: 1 – 11. DOI: 10.1109/AERO.2014.6836465.
 - 56 Li Y S, Loh L, Li S F, *et al.* Anomalous resistive switching in memristors based on two-dimensional palladium diselenide using heterophase grain boundaries [J]. Nature Electronics, 2021, **4**(5): 348 – 356. DOI: 10.1038/s41928-021-00573-1.
 - 57 Li S F, Li B C, Feng X W, *et al.* Electron-beam-irradiated rhenium disulfide memristors with low variability for neuromorphic computing[J]. Npj 2D Materials and Applications, 2021, **5**: 1. DOI: 10.1038/s41699-020-00190-0.
 - 58 Molinari A, Witte R, Neelisetty K K, *et al.* Configurable resistive response in BaTiO₃ ferroelectric memristors via electron beam radiation[J]. Advanced Materials, 2020, **32** (12): 1907541. DOI: 10.1002/adma.201907541.
 - 59 DeIonno E, Looper M D, Osborn J V, *et al.* Radiation effects studies on thin film TiO₂ memristor devices[C]// IEEE Aerospace Conference. Big Sky, MT, USA. IEEE, 2013: 1 – 8. DOI: 10.1109/AERO.2013.6497378.
 - 60 Rubi D, Kalstein A, Román W S, *et al.* Manganite based memristors: influence of the electroforming polarity on the electrical behavior and radiation hardness[J]. Thin Solid Films, 2015, **583**: 76 – 80. DOI: 10.1016/j.tsf.2015. 03.048.
 - 61 Vujisic M, Stankovic K, Marjanovic N, *et al.* Simulated effects of proton and ion beam irradiation on titanium dioxide memristors[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2010, **57**(4): 1798 – 1804. DOI: 10.1109/tns. 2010.2045512.
 - 62 Vujisic M, Stankovic K, Osmokrovic P. Effects of proton and ion beam irradiation on titanium dioxide memristors [C]//European Conference on Radiation and Its Effects on Components and Systems. Brugge, Belgium. IEEE, 2009: 65 – 69. DOI: 10.1109/RADECS.2009.5994554.
 - 63 Knežević I, Obrenović M, Rajović Z, *et al.* Simulation of ion beam irradiation effects in perovskite oxide memristors[J]. Advanced Materials Research, 2014, **906**: 89 – 95. DOI: 10.4028/www.scientific.net/AMR.906.89.
 - 64 薛强. VIB族金属氧化物阻变及其辐照研究[D]. 绵阳: 西南科技大学, 2019.
 - XUE Qiang. Resistive switching properties of VIB metal oxides and irradiation influence[D]. Mianyang: Southwest University of Science and Technology, 2019.
 - 65 Huang S T, Luo W B, Pan X Q, *et al.* Resistive switching effects of crystal - ion - slicing fabricated LiNbO₃ single crystalline thin film on flexible polyimide substrate[J]. Advanced Electronic Materials, 2021, **7**(9): 2170036. DOI: 10.1002/aelm.202170036.
 - 66 Xie Q, Pan X Q, Luo W B, *et al.* Effects of Ar⁺ irradiation on the performance of memristor based on single-crystalline LiNbO₃ thin film[J]. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2021, **32**(15): 20817 – 20826. DOI: 10.1007/s10854-021-06595-x.
 - 67 Wang J J, Pan X Q, Luo W B, *et al.* Voltage-programmable negative differential resistance in memristor of single-crystalline lithium niobate thin film [J]. Applied Physics Letters, 2022, **120**(3): 032901. DOI: 10.1063/5.0070132.
 - 68 Wang J J, Pan X Q, Wang Q, *et al.* Reliable resistive switching and synaptic plasticity in Ar⁺-irradiated single-crystalline LiNbO₃ memristor[J]. Applied Surface Science, 2022, **596**: 153653. DOI: 10.1016/j.apsusc. 2022.153653.

- 69 Pan X Q, Shuai Y, Wu C G, *et al.* Ar⁺ ions irradiation induced memristive behavior and neuromorphic computing in monolithic LiNbO₃ thin films[J]. Applied Surface Science, 2019, **484**: 751 – 758. DOI: 10.1016/j.apsusc.2019.04.114.
- 70 Ku B, Abbas Y, Kim S, *et al.* Improved resistive switching and synaptic characteristics using Ar plasma irradiation on the Ti/HfO₂ interface[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2019, **797**: 277 – 283. DOI: 10.1016/j.jallcom.2019.05.114.
- 71 DeIonno E, Looper M D, Osborn J V, *et al.* Displacement damage in TiO₂ memristor devices[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2013, **60**(2): 1379 – 1383. DOI: 10.1109/tns.2013.2249529.
- 72 Belov A, Mikhaylov A, Korolev D, *et al.* Medium-energy ion-beam simulation of the effect of ionizing radiation and displacement damage on SiO₂-based memristive nanostructures[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions With Materials and Atoms, 2016, **379**: 13 – 17. DOI: 10.1016/j.nimb.2016.02.054.
- 73 Taggart J L, Fang R C, Gonzalez-Velo Y, *et al.* Resistance state locking in CBRAM cells due to displacement damage effects[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2017, **64**(8): 2300 – 2306. DOI: 10.1109/tns. 2017. 2666147.
- 74 Ye T, Li X H, Wang Z Q, *et al.* Neutron irradiation-induced effects on the reliability performance of electrochemical metallization memory devices[J]. Journal of Semiconductors, 2021, **42**(1): 14103. DOI: 10.1088/1674-4926/42/1/014103.
- 75 Vujović M, Milutinović S, Vujisić M. Simulation-based comparison of energy deposition pathways in neutron-irradiated TiO₂ memristors[C]//Proceedings of 4th International Conference on Electrical. Electronics and Computing Engineering, Kladovo, Serbia, 2017.
- 76 Ismail M, Hashmi A, Rana A M, *et al.* Eradicating negative-Set behavior of TiO₂-based devices by inserting an oxygen vacancy rich zirconium oxide layer for data storage applications[J]. Nanotechnology, 2020, **31**(32): 325201. DOI: 10.1088/1361-6528/ab8b8e.
- 77 裴逸菲. 量子点掺杂Ga₂O₃忆阻器性能与物理机制研究[D]. 保定: 河北大学, 2020.
PEI Yifei. Performance and physical mechanism of quantum dot doped Ga₂O₃ memristor[D]. Baoding: Hebei University, 2020.
- 78 Wang X F, Tian H, Zhao H M, *et al.* Interface engineering with MoS₂-Pd nanoparticles hybrid structure for a low voltage resistive switching memory[J]. Small, 2018, **14** (2): 1702525. DOI: 10.1002/sml.201702525.