



**Estudio de memorias resistivas para la  
posible utilización en sistemas neuromórficos**



*Guadalupe Martinez Galvez*

Tesis de Licenciatura en Ciencias Físicas  
Facultad de Ciencias Exactas y Naturales  
Universidad Nacional de Buenos Aires

**Abril 2019**



---

La vida es corta, rompe las reglas, perdona  
rápido, besa lento, ama de verdad, ríete sin  
control y nunca dejes de sonreír, por más  
extraño que sea el motivo.



# Resumen


Se estudiaron muestras monocristalinas de  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  bajo el estímulo de pulsos de campo eléctrico para evidenciar los mecanismos de conducción y efectos de memoria volátil y no-volátil. Se trabajaron con diferentes protocolos de pulsos y se analizaron las similitudes de respuesta con los modelos que describen el comportamiento eléctrico de las neuronas. Se obtuvo.....

**Palabras clave:** Memorias resistivas. Aislante de Mott. Dispositivo neuromórfico.



# Índice general

Página

<b>Agradecimientos</b>	<b>I</b>
<b>Resumen</b>	<b>I</b>
<b>1 - Introducción</b>	<b>1</b>
1.1 - Memorias resistivas - Conmutación resistiva . . . . .	1
1.2 - Electrónica neuromórfica: de sinapsis a neurona . . . . .	6
1.2.1 - Aprendizaje e inteligencia artificial . . . . .	7
1.2.2 - El modelo LIF . . . . .	10
1.3 - Memorias basadas en aislantes de Mott . . . . .	11
1.3.1 - Transición de Mott inducida por campo eléctrico NANTES . . . . .	13
1.3.2 - Reproduciendo el comportamiento LIF . . . . .	15
1.4 - El compuesto $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$ . . . . .	16
1.4.1 - Estructura . . . . .	16
1.4.2 - Transporte eléctrico Zocco  . . . . .	17
1.4.3 - Propiedades de fase desoxigenada . . . . .	18
1.5 - Motivación (resumen de lo realizado) . . . . .	19
<b>2 - Detalles experimentales</b>	<b>21</b>
2.1 - Muestra y contactos . . . . .	21
2.2 - Mediciones IV . . . . .	22
2.3 - Mediciones R(T) . . . . .	22
<b>3 - Resultados</b>	<b>25</b>
3.1 - Memoria no-volátil y unipolar . . . . .	25
3.2 - Caracterización de la conducción eléctrica . . . . .	26

3.3 - Volatilidad vs calentamiento . . . . .	26
3.4 - Memoria volátil: comportamiento neuronal . . . . .	26
<b>4 - Discusión y conclusiones</b>	<b>29</b>
<b>5 - Perspectivas</b>	<b>31</b>
<b>Bibliografía</b>	<b>34</b>



# Índice de figuras

1.1	Prototipos de dispositivos. . . . .	2
1.2	Típicas curvas I-V, comportamiento unipolar (a) y bipolar(b) . . . . .	3
1.3	Modelo de neurona a red . . . . .	8
1.4	Analogía entre neuronas biológicas y artificiales. . . . .	9
1.5	Modelo matemático de la neurona. . . . .	9
1.6	Red neuronal artificial multicapa. . . . .	10
1.7	Modelo <b>Like-Integrate-and-Fire</b> ( LIF) . . . . .	11
1.8	Acoplamiento de grados de libertad en los aislantes de Mott y sus efectos. . . . .	12
1.9	Evolución de la resistencia bajo la aplicación de diferente series de pulsos. . . . .	14
1.10	CR obtenida aplicando trenes de pulsos cortos para diferentes $t_{ON}$ y $t_{OFF}$ . [Stoliar et al., 2017] . . . . .	16
1.11	Estructura cristalina de $Sr_2IrO_4$ . . . . .	17
1.12	Gap . . . . .	17
1.13	. . . . .	18
1.14	. . . . .	19
2.1	Esquema de disposición de máscaras para realizar el sputering. . . . .	21
2.2	Muestra X2 antes y después del sputering. . . . .	22
2.3	Protocolo pulsos. . . . .	23
2.4	Protocolo relajacion pulsos. . . . .	23
3.1	Unipolaridad . . . . .	25
3.2	Unipolaridad . . . . .	26
3.3	Unipolaridad . . . . .	26
3.4	Unipolaridad . . . . .	27



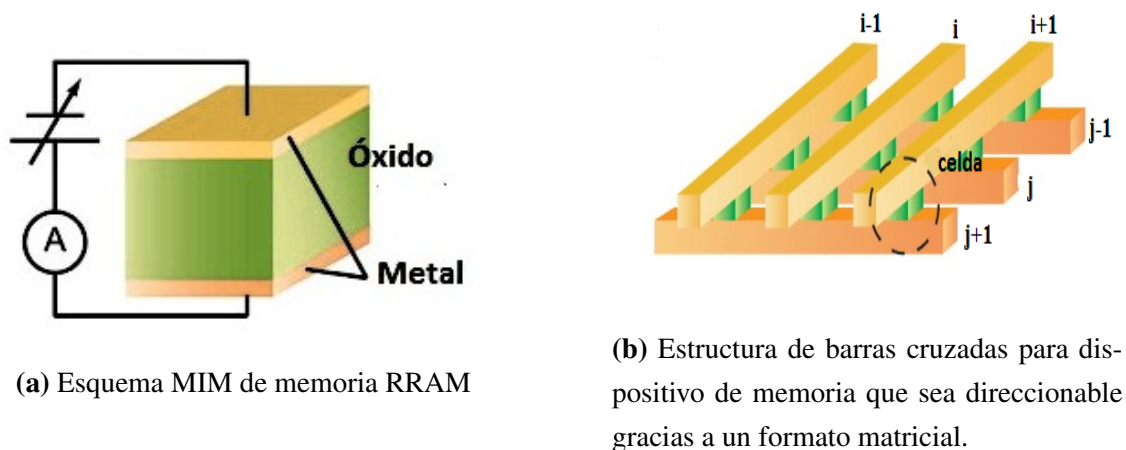
# Introducción

## 1.1. Memorias resistivas - Conmutación resistiva

Las denominadas memorias resistivas (RRAM) corresponden a una nueva variedad de dispositivos basados en materiales tales como óxidos de metales de transición, óxidos binarios, óxidos ternarios, colgagernuros, compuestos orgánicos, etc. cuyo proceso de guardado de información se debe al cambio de estado resistivo basado en el fenómeno de conmutación resistiva (CR). En lugar de guardar la información en forma de carga como las conocidas memorias flash, las memorias resistivas guardan la información en su valor de resistencia.

La mayoría de las celdas de memorias RRAM son como un simple condensador, tienen una estructura tipo metal-aislante-metal (MIM, en inglés), donde “M” se refiere a un metal o conductor no-metálico e “I” a un aislador o semiconductor, como se muestra en la Figura(1.1a). Gracias a esta simple estructura se ha propuesto una arquitectura tipo barras cruzadas para posibles dispositivos de memoria que pueden interconectarse en forma sencilla, Figura(1.1b). Este tipo de configuración también posee potencial para ser desarrollado en forma tridimensional aumentando de esta manera los niveles de almacenamiento de datos.

Este tipo de memorias tienen altas probabilidades de ser escaleables por su simple diseño y al no poseer la limitación del tamaño de celda unidad de almacenamiento de datos, resultan ser de gran interés tecnológico.

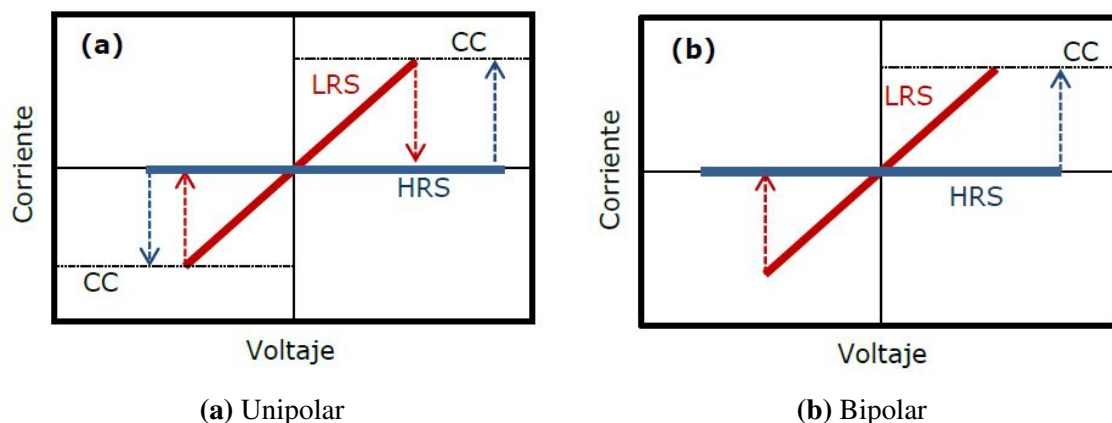


**Figura 1.1:** Prototipos de dispositivos.

El fenómeno de conmutación resistiva (CR) (*resistive switching* (RS), en inglés), consiste en el cambio de la resistencia del material mediante la aplicación de pulsos eléctricos, es decir, mediante el estímulo de pulsos externos se induce en el material un cambio de su resistencia. Son diversos los materiales que han mostrado tener las características de la conmutación resistiva, la cual incluye a óxidos binarios como NiO, TiO<sub>2</sub> y ZnO, sólidos electrolíticos como Ag<sub>2</sub>S y GeSe, perovskitas, materiales orgánicos, siliconas amorfas ( $\alpha$ -Si) y nitratos.

Fué en el año 1962 ~~quien~~ <sup>Whickmott</sup> reportó la primera curva característica de histéresis de corriente vs voltage (I-V) en una estructura de metal-aislador-metal de Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Al, indicando que la CR ocurría como resultado del campo eléctrico aplicado. Desde entonces una amplia variedad de materiales se han estudiado en una configuración MIM presentando curvas de histéresis. Dichas investigaciones han demostrado que la velocidad de cambio puede ser del orden de 10 nanosegundos [Sawa, 2008]. Los ciclos de escritura están entre 1E+6 y 1E+10, el tiempo de retención va entre 1-10 años según el tipo de RRAM, entre otras características.[ITRS, 2013].

Para las memorias RRAM el cambio resistivo se produce entre dos estados de resistencia, es decir, el estado de resistencia alto (HRS, por sus siglas en inglés), y el estado de resistencia bajo (LRS), entre los que se puede cambiar de un estado a otro en forma reversible con el apropiado estímulo eléctrico, aunque con el protocolo de escritura adecuado pueden lograrse valores intermedios y hasta modificar la amplitud del cambio resistivo que define a ambos estados. El proceso por el cual la resistencia del dispositivo es cambiado del estado HRS al LRS es llamado proceso de “SET”, mientras que “RESET” se refiere al proceso opuesto, es decir de LRS a HRS. Si las resistencias correspondientes a los estados (HRS o LRS) logran perdurar en el tiempo sin la presencia del



**Figura 1.2:** Típicas curvas I-V, comportamiento unipolar (a) y bipolar(b)

estímulo externo se está en presencia de un cambio no-volátil, de lo contrario es volátil. Ambas resistencias correspondientes a los estados HRS y LRS deben ser leídas con un voltaje muy bajo de manera de no afectar la resistencia del estado y cambiarla. De acuerdo a la relación de la polaridad entre los procesos de SET y RESET el comportamiento de la conmutación resistiva puede clasificarse en: unipolar y bipolar. Esta clasificación se evidencia en los diferentes aspectos de las curvas de corriente-voltage (I-V), como se muestra en la Fig(1.2).

En el comportamiento unipolar se observa que la dirección del cambio no depende de la polaridad del voltaje aplicado. En la Fig(1.2a) se muestra una curva típica I-V en escala semilogarítmica, el dispositivo cambia de HRS a LRS para una voltaje alto ( $V_{SET}$ ) y el sistema regresa de HRS a LRS a un voltaje ( $V_{RESET}$ ) menor que  $V_{SET}$  y de igual polaridad. En el proceso de SET es necesario tener una corriente de complianza (CC) para evitar la inutilización de la muestra o breakdown, asociada a la producción de un exceso de zonas conductoras en el óxido que terminan cortocircuitando al dispositivo. Mientras que para el proceso de RESET es innecesaria. Los dispositivos que usualmente exhiben un comportamiento unipolar son generalmente simétricos.

Generalmente se asocia al comportamiento unipolar, con el mecanismo de conmutación correspondiente a la formación de un filamento conductor; producido bajo el estímulo de pulsos eléctricos que hacen que el dispositivo pase de un estado HRS a LRS, mientras que el efecto del calentamiento Joule provoca la ruptura del filamento, devolviendo el dispositivo a su estado HRS.

En contraposición la dirección del cambio (es decir, el switch de HRS a LRS o a la inversa de LRS a HRS) de una memoria denominada bipolar depende de la polaridad del voltaje aplicado, ver Fig(1.2b). La polaridad de  $V_{RESET}$  es opuesta a la de  $V_{SET}$ . Los

dispositivos que presentan un comportamiento bipolar en la conmutación resistiva son generalmente de una estructura asimétrica. La principal diferencia entre el caso unipolar y bipolar es que el bipolar requiere del cambio de polaridad para producir RS contrario.

En ocasiones es necesario introducir una corriente de complianza **EXPLICAR PORQUE?** y también se han observado cambios en la dirección de la conmutación dependiendo del orden de la deposición de los electrodos y dependiendo de las técnicas utilizadas, en algunos casos es necesario realizar un proceso de electroformado para activar el dispositivo (el electroformado cambia el material de un estado virgen cerca de ser aislante a un estado de SET o RESET). Todas estas peculiaridades implican que el mecanismo de conmutación resistiva no es ajeno a la calidad del material y al proceso tecnológico de formación del dispositivo y su estructura.[Pan et al., 2014]

La conmutación resistiva puede ser lograda mediante diversos procesos físicos entre los que se destacan: (i) migración iónica, (ii) reacciones termoquímicas; (iii) efectos de trampa controlada y (iv) efectos electrónicos tales como Transición Metal-Aislador de Mott (MIT) usados en memorias de Mott.[Pan et al., 2014]

- (i) Las memorias RRAM basadas en migración catiónica tienen uno de los electrodos que es electroquímicamente activo, puede ser de Ag o Cu, y el otro electrodos es electroquímicamente neutro puede ser de Pt o Au. Los filamentos conductores son formados por la disolución electroquímica y luego la reubicación de los átomos activos del metal. La dirección de crecimiento del filamento conductor depende de la movilidad de los cationes y de la energía de nucleación del filamento y puede ir del electrodo activo al inerte o desde el centro hacia los electrodos.

La migración iónica que conduce a la CR requiere que el proceso sea estable durante la formación y ruptura del filamento conductor en la memoria. Dado que la ruptura local y re-formación del filamento conductor durante el proceso de RESET y SET nos llevan a la alternancia de HRS Y LRS. Sabemos que en la naturaleza hay dos tipos de iones (cationes(+)) y aniones(-)) los cuales viajan en direcciones opuestas al someterlos a un campo eléctrico. Basados en esto se diferencia en migración catiónica o iónica.

Las celdas de memoria RRAM basadas en migración de aniones (típicamente  $O^{2-}$ ) están formadas por óxidos binarios (como por ejemplo  $TiO_2$  o  $Ta_2O_5$ ) o por óxidos complejos como aquellos basados en la estructura de perovskita (manganitas o cupratos superconductores) o por nitruros (TiN). Generalmente por simplicidad se describe la migración de aniones por la migración de su contraparte cargada positivamente, es decir por las vacancias de oxígeno en óxidos y por las vacancias de nitrógeno si la muestra es un nitruro. Durante los ciclos de CR, la migración

de estas cargas de vacancias conducidas por el campo externo pueden resultar en cargas de valencia de los cationes de la muestra, es por ello que las memorias de este tipo son usualmente llamadas memorias de cambio de valencia (VCM). Las memorias tipo VCM se pueden clasificar en las filamentarias o las de tipo interface, esta clasificación se basa en si la resistencia del estado LRS depende del área de la celda.

- (ii) reacciones termoquímicas (NiO). Las reacciones termoquímicas llevan a la descomposición y la consecuente formación de los filamentos conductores (SET) y el proceso de disolución del filamento o quemado (RESET). A esta clase de materiales corresponden las memorias de Pt/NiO/Pt, Pt/ZnO/Pt y W/poliestireno/W.
- (iii) Trampa controlada, en este caso la carga de los portadores inyectados desde los electrodos puede ser atrapada por el material gracias a los defectos propios o introducidos. Esta carga extra en el material puede modular las barreras de los potenciales y afectar los procesos de transporte a través de la muestra y producir la CR. Basada en la distribución de las trampas pueden agruparse en tres categorías: trampas de interface, trampas en el medio del material producidas por una capa de nanopartículas, trampas de cargas distribuidas aleatoriamente.
- (iv) Transición metal-aislador en aislantes de Mott, estos pueden agruparse en dos categorías según el proceso que origina la CR. En la primera categoría es ampliamente aceptado que la transición es conducida por un campo eléctrico inducido y los efectos del calentamiento Joule como sucede en  $\text{VO}_2$ ,  $\text{Ca}_2\text{RuO}_4$ ,  $\text{NbO}_2$ , en estos materiales existe una temperatura umbral (TIMT) por encima de la cual el material pasa de ser aislante a conductor, por ejemplo TIMT = 340 K para  $\text{VO}_2$ , y 357 K para  $\text{Ca}_2\text{RuO}_4$ . En la otra categoría se tiene a materiales como el calcogenuro aislante de Mott  $\text{AM}_4\text{Q}_8$  (A=Ga, Ge; M=V, Nb, Ta; Q=S, Se) donde la CR es atribuida a un campo eléctrico inducido que provoca una separación de fases a escala nanométrica. [Tranchant et al., 2015][Tranchant et al., 2017]. Cabe aclarar en este punto que nuestro material de estudio  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  está incluido dentro de esta clase de materiales.

Las memorias RRAM basadas en la CR son uno de los ejemplos reconocidos de memristores (elementos cuya resistencia depende de la memoria del material) el cuarto elemento fundamental de un circuito, originalmente propuesto en 1971 por Chua. [Chua, 1971]

pongo lo del dibujito de los 4 elementos básicos y eso de Chua?

## 1.2. Electrónica neuromórfica: de sinapsis a neurona

La ingeniería neuromórfica trata de imitar el comportamiento de sistemas nerviosos a través de la implementación de redes neuronales artificiales basadas en la combinación de un gran número de neuronas artificiales interconectadas por un gran número de sinapsis artificiales. Para implementar efectivamente una red neuronal directamente en el hardware e integrarlo en chips de alta densidad es indispensable desarrollar dos tipos de dispositivos, neuronas artificiales y sinapsis. En respuesta a estas demandas se tiene el desarrollo de los componentes llamados memristores los cuales parecen ser los indicados para implementar la función sináptica dentro de un circuito neuromórfico. Más aún ellos pueden ser integrados en un arreglo de estructura de barras o matricial, el cual simplifica la interconexión entre un gran número de neuronas. Vemos aquí que las descripciones hechas en cuanto a los memristores y su utilización para el desarrollo de la electrónica neuromórfica no son otra cosa que las memorias RRAM de la sección anterior. Entonces materiales que presenten CR pueden utilizarse para hacer memristores los cuales son el fundamento del nuevo enfoque de procesamiento de la información : lo que se llama computación neuromórfica. La computación neuromórfica es un nuevo modo de procesamiento de la información en el que la memoria principal (RAM) y la memoria secundaria (hardware) se gestionan por los mismos componentes, como lo hacen las neuronas en el cerebro humano.

En cuanto al avance en la construcción de neuronas artificiales las primeras han consistido en circuitos basados en silicio. En 2018 en la reunión de NICE (Neural Inspired Computational Element, en inglés) Elementos Computacionales Inspirados en Neuronas NICE celebrada en Portland, EEUU, se presentaron tres desarrollos de chips neuromórficos : uno de INTEL que utiliza una red neuronal asincrónica spiking (SNN) adaptativa y automodificable con 128 núcleos neuromórficos, un Scale-2 que es un nuevo concepto de computación dendrítica con un diseño análogo-digital y un new SpiNNaker-2 chip de 144 cores. En éstos casos por chip neuromórfico se entiende, un chip que simula el cerebro en su comportamiento pero es de silicio con una nueva arquitectura que tiene la capacidad de aprender vía un microcódigo y reglas de aprendizaje.


Por otro lado también en 2018, el equipo de Julie Grollier en el Lab de Thales (CNRS, Francia), dió a conocer el desarrollo de la nanoneurona y nanosinapsis. Con un novedoso material que consiste en nanotubos de espesor 1000 veces menor que un cabello humano. El equipo de trabajo logró mostrar que la nanoneurona y nanosinapsis funciona, ya que fue capaz de reconocer diferentes palabras de diferentes personas. Ahora el equipo trabaja en lograr incorporarlo a un chip de silicio.

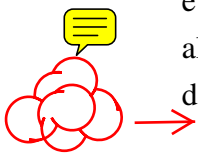


### 1.2.1. Aprendizaje e inteligencia artificial




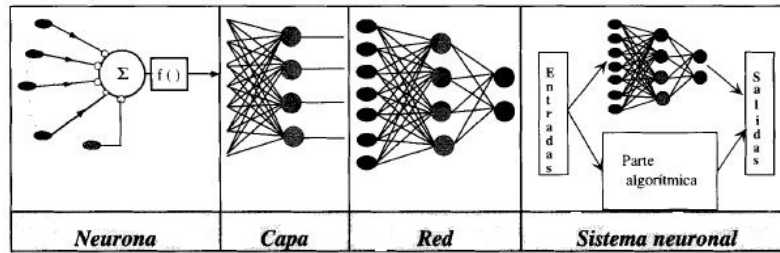
La inteligencia artificial (IA) y las redes neuronales artificiales son dos campos emocionantes y entrelazados en informática. Hay, sin embargo, varias diferencias entre los dos que vale la pena conocer. La diferencia clave es que las redes neuronales son un trampolín en la búsqueda de la inteligencia artificial. Fué John Mc.Carthy en 1960 quien acuña el término *Inteligencia Artificial* o (IA) para definir los métodos algorítmicos capaces de hacer pensar a los ordenadores [Martín del Brío & Sanz, 2006], pero en la actualidad la utilización del término dista bastante de esta concepción.

La inteligencia artificial es un vasto campo que tiene el objetivo de crear máquinas inteligentes, algo que se ha logrado muchas veces dependiendo de cómo se define la inteligencia. A pesar de que tenemos computadoras que pueden vencer a campeones de ajedrez, la meta de la IA es generalmente vista como una búsqueda de inteligencia general, o inteligencia que se puede aplicar a diversos problemas no relacionados. El resultado hasta el momento con respecto a lo hecho con IA no ha sido más que realizar un robot específico para una tarea determinada. Para superar este problema de las IA orientadas a la tarea, los científicos de la computación empezaron a ajar con redes neuronales artificiales. Nuestros cerebros **generalmente inteligentes** están formados por redes neuronales biológicas que hacen conexiones basadas en nuestras percepciones y estímulos externos. Un ejemplo muy simplificado es el dolor al quemarse. Cuando esto sucede por primera vez, se hace una conexión en el cerebro que identifica la información sensorial conocida como fuego (llamas, olor a humo, calor) y lo relaciona con el dolor. Así es como se aprende, a una edad temprana, cómo evitar quemarse. A través de esta misma red neuronal, los humanos (y animales) aprenden generalidades como “el helado sabe bien” e incluso hacen saltos deductivos del tipo “siempre hay nubes antes de la lluvia”. Aunque algunas deducciones no resultan siempre correctas las mismas se pueden corregir a través de la experiencia, lo que permite un aprendizaje adaptativo.



Las redes neuronales artificiales intentan recrear este sistema de aprendizaje en computadoras construyendo un programa simple para responder a un problema y recibir retroalimentación sobre cómo lo hace. Una computadora puede optimizar su respuesta haciendo el mismo problema miles de veces y ajustando su respuesta de acuerdo a la retroalimentación que recibe. A la computadora se le puede dar un problema diferente, el cual puede aproximarse de la misma manera que aprendió de la anterior. Al variar los problemas y el número de enfoques para resolverlos los cuales la computadora ha aprendido.

Se ha llegado a niveles de cámaras que pueden reconocer la sonrisa de una persona y también  una imagen corresponde a un perro, pero se siguen cometiendo errores; y



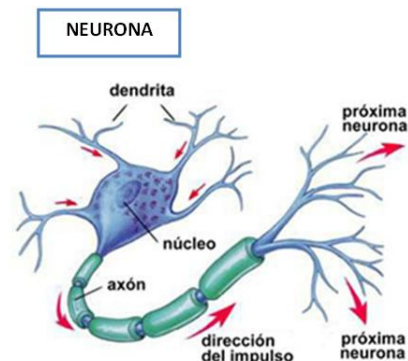
**Figura 1.3:** Construcción del concepto de red neuronal a partir de una neurona.

es cierto que un niño no necesita un arduo entrenamiento para poder identificar perros. Estamos aún muy lejos de las redes neuronales para llegar a la inteligencia artificial ya que los problemas que se están abordando en las redes neuronales se expresan matemáticamente. No se puede sostener una flor hasta una computadora y decirle que adivine el color por el olor, porque el olor tendría que ser expresado en números y entonces la computadora tendría que catalogar esos números en memoria, junto con las imágenes de las flores emitiendo ese olor.

Dicho esto, las redes neuronales artificiales son una de las técnicas para producir aprendizaje en las máquinas, elemento base de la IA. La inteligencia artificial tendría un desarrollo posible a través de las técnicas de como imitar redes neuronales biológicas.

~~Se describió hasta aquí la idea de una red neuronal pero falta describir los aspectos básicos de su elemento principal, es decir la neurona.~~

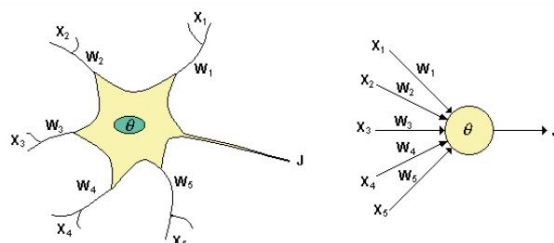
Una neurona generalmente está compuesta por tres elementos básicos: el cuerpo o soma, el axón y las dendritas. El soma contiene la información que necesita la neurona para cumplir sus procesos básicos; las dendritas son prolongaciones cortas cuya función es recibir los impulsos de otras neuronas y enviarlos al soma de la neurona; el axón es una prolongación única cuya función es enviar el impulso desde el soma neuronal a los terminales axónicos donde estos transmitirán un mensaje a otra neurona por medio de una unión que se denomina sinapsis.



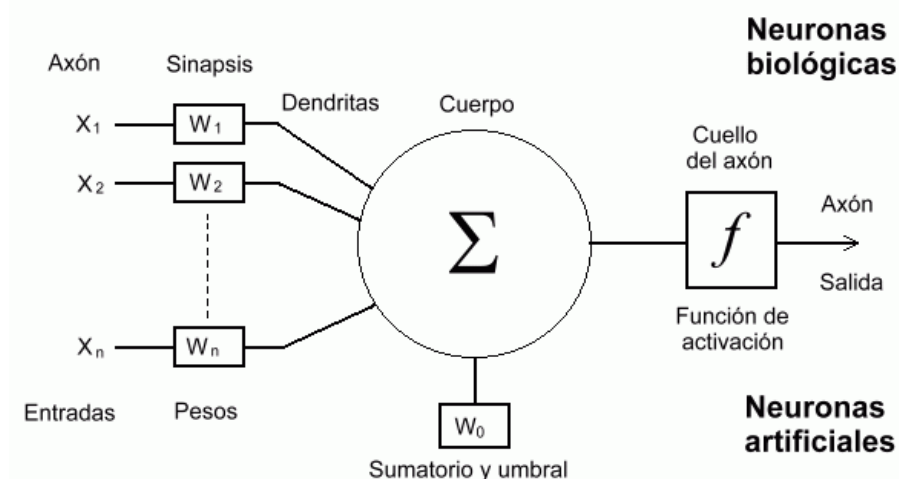
La comunicación neuronal es posible debido a dos notables propiedades de las neuronas : la irritabilidad, que le confiere a la célula la capacidad de respuesta a agentes físicos y químicos con la iniciación de un impulso y; la conductibilidad, la cual le proporciona la capacidad de transmitir los impulsos de un sitio a otro.

La forma simular una neurona de manera de llevarla a un sistema que sea funcional

para desarrollarlo computacionalmente no es algo complicado ya que las neuronas forman un procesador sencillo. Se puede decir que se tiene un subsistema de entrada identificado con las dendritas, un subsistema de procesamiento identificado con el soma y un subsistema de salida identificado con el axón. En la Fig.(1.4) podemos ver cómo se hace la identificación de la neurona biológica con su contraparte artificial.



**Figura 1.4:** Analogía entre neuronas biológicas y artificiales. Podemos identificar a  $X_i$  axones,  $W_i$  sinapsis,  $\Sigma$  soma acumulador de estímulos,  $J$  señal de salida.



**Figura 1.5:** Modelo matemático que cumple los principios básicos para la comunicación interneuronal, un sumador de impulsos y una función de activación que se activa a partir de cierto umbral.

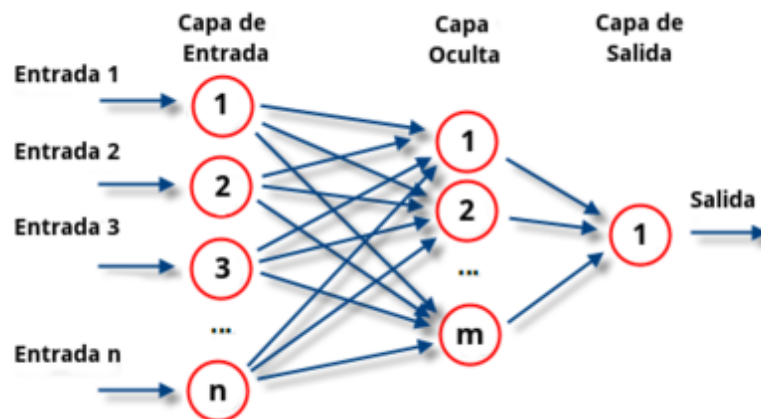
El psicólogo canadiense Donald Hebb propone que el aprendizaje en las neuronas ocurre por la actividad neuronal coincidente, esto se conoce como la ley de Hebb o aprendizaje Hebbiano "cuando el axón de la célula A excita la célula B y repentinamente toma lugar en su activación, ocurre algún proceso de crecimiento o cambio metabólico en una o ambas células tal que la eficacia de A, como una de las células que dispara a B, se incrementa". Según la regla de aprendizaje de Hebb, la actividad coincidente en las neuronas presináptica y postsináptica es crítica para fortalecer la conexión entre ellas, esto

se denomina mecanismo asociativo pre-post. En la asociación con la neurona artificial este procedimiento estaría considerado en los pesos  $W_i$  para las sinapsis que se ven en la Fig.1.4 y Fig.1.5

La intensidad de la sinapsis representada en el modelo por  $W_i$  no es una cantidad fija, sino que puede ser modulada por una escala temporal diferente a la del disparo de la neurona (horas, días, meses). La plasticidad sináptica es la que constituye en buena medida el aprendizaje como postuló Hebb en 1949 [Martín del Brío & Sanz, 2006]. Dentro de los modelos de redes neuronales que se proponen se consideran diferentes formas de modelar el sistema nervioso, mediante establecimiento de nuevas conexiones, ruptura de otras, modelando la intensidad sináptica (plasticidad) o con muerte neuronal.

---

Las redes neuronales artificiales tratan de reproducir tres conceptos básicos del cerebro humano, a saber: el paralelismo de cálculo, la memoria distribuida y la adaptabilidad. Para ello el modelo que se ha propuesto está formado por elementos básicos de neuronas artificiales conectadas en una capa y capas conectadas en una red, como podemos ver en la siguiente Figura(1.6).



**Figura 1.6:** Red neuronal artificial multicapa.



### 1.2.2. El modelo LIF

El modelo neuronal Leaky-Integrate-and-Fire (LIF) es uno de los modelos más ampliamente utilizados para analizar el comportamiento eléctrico de sistemas neuronales. El mismo describe el potencial de la neurona en términos de las conexiones sinápticas y de la corriente inyectada que éstas reciben. Dicho modelo caracteriza el estado de la neurona por el potencial de su membrana el cual recibe excitaciones o contribuciones inhibitorias mediante las conexiones sinápticas que llegan de otras neuronas. Estas entradas son sopesadas por sus respectivos vínculos sinápticos y modeladas como una corriente inyectada

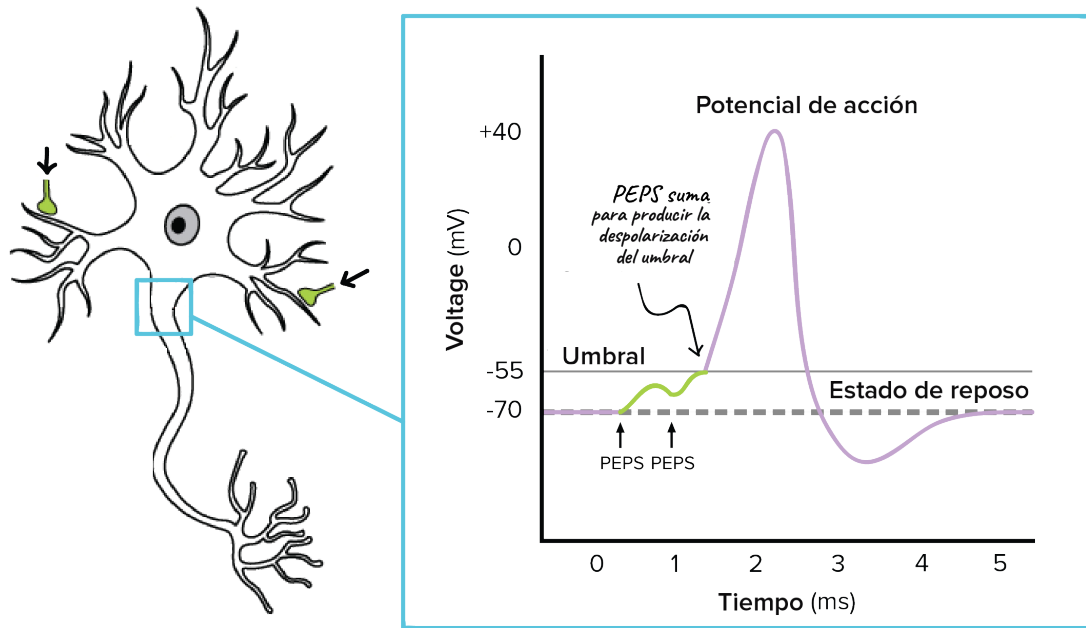
o como un cambio en la conductancia de la membrana.

El modelo trata a la neurona como único compartimento, ignora a las dendritas y desestima las fugas, porque las contribuciones sumadas al potencial de la membrana decaen con un tiempo característico constante. Cuando la membrana alcanza un potencial umbral fijo el mecanismo genera un pulso saliente (spike) y luego que el potencial cruza el umbral, el mismo se resetea o vuelve a su estado inicial y queda desactivada por un breve tiempo que corresponde al período refractario de la neurona. El modelo es descrito entonces por la dinámica del potencial de la membrana de la neurona,  $v(t)$ ,

$$Cm \frac{dv(t)}{dt} = I_{leak}(t) + I_s(t) + I_{inj}(t) \quad (1.1)$$

donde  $Cm$  es la capacitancia de la membrana,  $I_{leak}(t)$  es la corriente debida a la fuga pasiva de la membrana,  $I_s(t)$  es la corriente que describe el efecto sináptico entrante y  $I_{inj}(t)$  es la corriente inyectada dentro de la neurona [Burkitt, 2006].

En la Figura 1.7 podemos observar las etapas que trata de reproducir el modelo LIF.



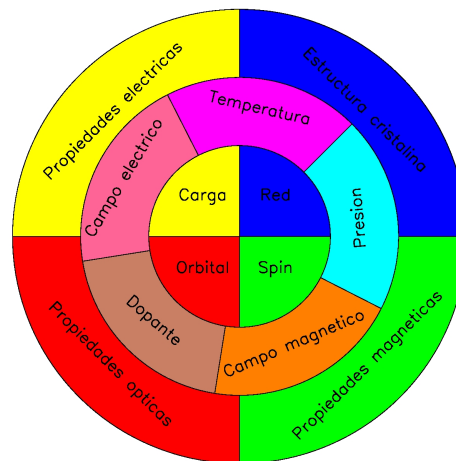
**Figura 1.7:** Modelo Like-Integrate-and-Fire ( LIF)  
(peps=potencial excitatorio post sináptico)

### 1.3. Memorias basadas en aislantes de Mott

Ya por el año 1937 deBoer y Verwey mostraron que la teoría de bandas no era suficiente para explicar las propiedades eléctricas de algunos materiales que tenían parcialmente llena la banda electrónica  $d$ . Dichos materiales debían comportarse como metales

según la teoría de bandas pero eran aislantes. Fue Nevill Mott en el año 1949 quién desarrolló una teoría de cómo la interacción electrón-electrón puede explicar el estado aislante de éstos materiales, a los cuales se denomina Aislantes de Mott. Con el avance de las investigaciones no sólo se mostró que estos materiales presentan un comportamiento aislante no esperado sino que frecuentemente exhiben una transición de fase con un cambio drástico en sus propiedades eléctricas y magnéticas bajo varios estímulos como cambio de temperatura, presión, pulsos eléctricos o dopaje del material. A esta transición se la denomina Transición Metal-Aislador de Mott (MIT) y puede ser definida como "una transición de un aislante antiferromagnético a un metal", según propias palabras de Mott [Zhou & Ramanathan, 2015].

En la actualidad se conoce que el carácter aislante es debido a una fuerte correlación entre electrones, la repulsión de Coulomb es tan fuerte que inhibe la delocalización de los electrones de las bandas o que no puedan saltar a travéz de la red. Una de las formas de lograr una MIT en un material es mediante estímulos eléctricos que produzcan una CR del mismo, este mecanismo es utilizado para el desarrollo de las llamadas memorias de Mott. Es importante que quede claro que la transición MIT es netamente un efecto electrónico pero la energía es tal que hay otras interacciones que están en el mismo orden de magnitud y por lo tanto se tornan relevantes en la variación de las propiedades electrónicas del material [Gebhard, 1997]



**Figura 1.8:** En los aislantes de Mott diferentes grados de libertad están acoplados, lo que los hace sensibles a variaciones y por lo tanto presentan cambios en diferentes propiedades físicas. El círculo interior muestra el acoplamiento de los grados de libertad. El anillo del medio representa varias formas de desencadenar la transición. El anillo exterior ilustra las propiedades físicas que pueden cambiar debido a la transición [Zhou & Ramanathan, 2015].

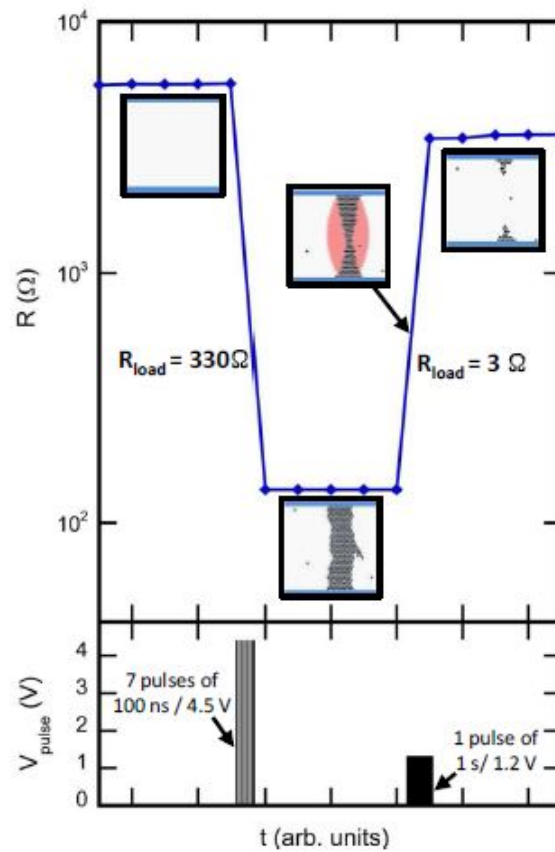
En la Fig(1.8) se esquematiza los diferentes grados de libertad que pueden desencadenar la transición e intervenir en el desarrollo de diferentes formas. Por otro lado también posibilitan el manejo de los dispositivos de aislantes de Mott [Zhou & Ramanathan, 2015]. Por ejemplo, campos magnéticos externos pueden producir un gran cambio en la resistencia de algunos óxidos, este efecto es llamado magnetoresistencia colosal. También es posible utilizar campos eléctricos para controlar la magnetización de materiales, esto se conoce como efecto magnetoelectrico.

### 1.3.1. Transición de Mott inducida por campo eléctrico NANTES

El calogenuro aislante de Mott  $AM_4Q_8$  ( $A=Ga, Ge$ ;  $M=V, Nb, Ta$ ;  $Q=S, Se$ ) pertenece a la clase de materiales en los que se puede inducir la transición de Mott (MIT). En dichas memorias de Mott los datos son guardados utilizando el mecanismo de RS. Mediante la aplicación de pulsos eléctricos se induce un campo eléctrico que conduce al cambio resistivo que se origina a partir de un fenómeno de avalancha [Guiot, 2013]. Dependiendo de la intensidad del campo aplicado el RS es volátil o no-volátil.

Trabajos hechos en films y cristales por el grupo del Instituto de materiales de Nantes [Tranchant et al., 2017], [Tranchant et al., 2015] han mostrado que la transición volátil conducida por pulsos eléctricos por encima de un cierto campo umbral  $V_{th}$  está relacionada con los efectos de avalancha. Se describe la transición en términos de un colapso de sitios de *Aislante de Mott* (MI) a sitios *Metálicos Correlacionados* (CM), por sus siglas en inglés. Mediante excitaciones de pulsos eléctricos se crea un filamento conductor via percolación de sitios CM dentro de una matriz de sitios MI y es posible estabilizar el estado volátil a un estado no-volátil. Este cambio de volátil a no-volátil se logra haciendo crecer el filamento conductor en diámetro por encima de un diámetro crítico mediante la aplicación de pulsos eléctricos. Lograr el estado no-volátil no quiere decir que el filamento se encuentra en un estado de total percolación sino que existe un filamento residual dentro del material aislante, esto deja al material en un estado de resistencia mayor a la medida durante el pulso. La transición HRS a LRS es decir el SET se logra mediante la creación de sitios *Metálicamente Correlacionados* por la estimulación eléctrica que se pueden alcanzar mediante la aplicación de pulsos por encima de un cierto umbral (protocolo de pulso simple) o por aplicación de acumulación de pulsos en un determinado intervalo temporal(protocolo de pulsos múltiples).

En estos trabajo se sugiere que la transición RESET, es decir el paso del estado LRS a HRS se produce debido a la activación térmica que desestabiliza la fase metaestable de los sitios CM transformándolos en sitios MI produciendo de este modo la disolución del filamento creado en la transición SET. Para favorecer la activación térmica se utilizaron

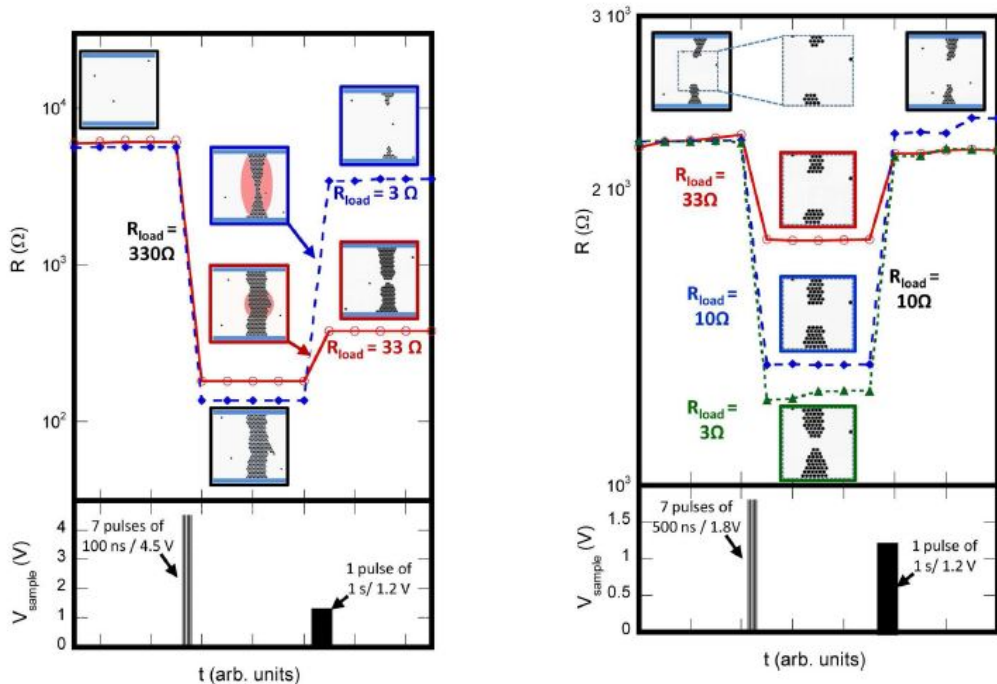


**Figura 1.9:** Evolución de la resistencia bajo la aplicación de diferente series de pulsos. La transición SET es controlada por una secuencia de multipulsos de 4.5V/7x100ns, mientras que la RESET es controlada por un simple pulso de 1,2V/1s. [Tranchant et al., 2017]

pulsos de larga duración y bajo voltaje para de este modo potenciar el efecto de calentamiento Joule del material. Como resumen de estos estudios se obtiene un protocolo para producir la transición SET y RESET que consiste en una alternación entre pulsos moderados de corta duración y pulsos largos de baja voltaje que permite cambiar el estado de resistencia del material entre HRS y LRS y viceversa. Utilizando este protocolo y variando en el mismo la resistencia de carga para la limitación de la corriente circulante en el circuito en el caso de la transición RESET es posible alcanzar diferentes estados de resistencia, ver Fig(1.10a).

La posibilidad de que se puedan alcanzar estos estados intermedios de resistencia hace que sea mayor la cantidad de bits de información que pueden ser guardados en un simple nodo del dispositivo. Entonces dependiendo de las condiciones establecidas para el RESET (resistencia de carga, duración del pulso y voltaje) es posible eliminar parcial





(a) Efecto de la variación de la resistencia de carga en la transición RESET, permite alcanzar niveles de estados de resistencia intermedios.[Tranchant et al., 2017]

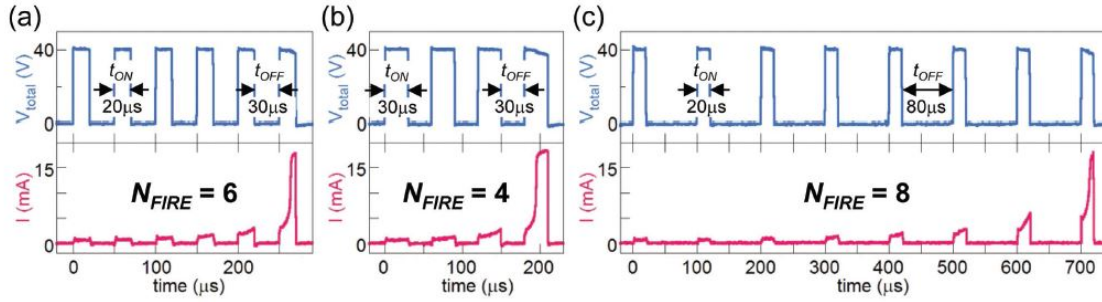
(b) Efecto de la variación de la resistencia de carga en la transición SET, permite controlar la formación del filamento.[Tranchant et al., 2017]

o totalmente el filamento conductor. Del mismo modo si se varia la resistencia de carga para controlar la corriente de complianza en la transición SET es posible reconstruir el filamento, ver Fig(1.10b). En las Fig(1.10a) y Fig(1.10b) se esquematiza la formación del filamento desde los contactos hacia el centro del material y su destrucción en sentido inverso, este escenario corresponde simplemente a un esquema porque no se sabe en que parte del filamento se localiza su rotura.

### 1.3.2. Reproduciendo el comportamiento LIF

Continuando el trabajo realizado por Tranchant con el aislante de Mott  $\text{GaTa}_4\text{Se}_8$  Stoliar [Stoliar et al., 2017] mostró que este material incorporado a un dispositivo de dos terminales puede reproducir el comportamiento del modelo LIF antes mencionado. La experiencia consistió en para un determinado valor de voltaje del pulso (que fue de 40V) hacer variar el tiempo durante el cual se aplicaba ese pulso ( $t_{ON}$ ) y el intervalo temporal entre pulsos ( $t_{OFF}$ ). Se logró mostrar que para producir la CR influyen tanto el tiempo de aplicación del pulso como así también el intervalo entre pulsos, mostrando que el mate-

rial puede reproducir el efecto de acumulación para producir lo que el LIF denomina el disparo (en este caso la transición).



**Figura 1.10:** CR obtenida aplicando trenes de pulsos cortos para diferentes  $t_{ON}$  y  $t_{OFF}$ . [Stoliar et al., 2017]

El hecho de que la CR puede alcanzarse con diferentes duraciones de pulsos las cuales son menores que el tiempo de disparo ( $t_{fire}$  del modelo) es una evidencia de que el efecto es acumulativo.

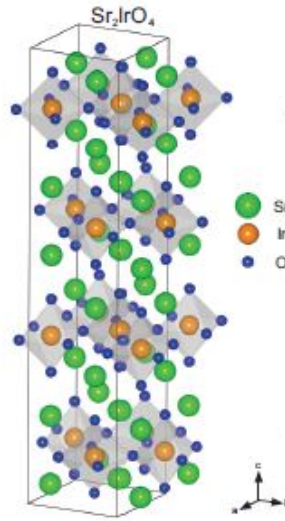
## 1.4. El compuesto $Sr_2IrO_4$

$Sr_2IrO_4$  es tal vez uno de los iridatos más estudiados pero aún así presenta varias cuestiones sin ser dilucidadas todavía. El compuesto contrariamente a lo esperado debido a la delocalización de los orbitales 5d de Ir presenta un estado aislante en lugar de metálico como predice la teoría de bandas. El inesperado comportamiento aislante ha sido atribuido a un fuerte acoplamiento spin-órbita ( $SOC = 0.2-1\text{eV}$ ) que es comparable con la repulsión de Coulomb  $U=0.5-2\text{ eV}$ , dando lugar a un novedoso estado fundamental del aislante de Mott con  $J_{eff} = 1/2$ .

El compuesto pertenece a la familia de los Ruddlesden-Popper  $Sr_{n+1}Ir_nO_{3n+1}$  ( $n=1, n=2$  define la cantidad de planos Ir-O en la celda unidad). Es un aislante de Mott con temperatura de Néel  $=240\text{K}$  y energía de gap  $\Delta \leq 620\text{ meV}$  y un acoplamiento magnético relativamente pequeño de  $60-100\text{ meV}$  [Cao & Schlottmann, 2018]

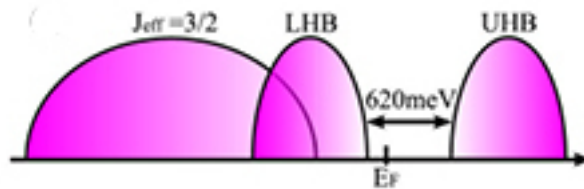
### 1.4.1. Estructura

El  $Sr_2IrO_4$  se cristaliza en una estructura tetragonal *grupo*  $I4_1/acd$  y con la rotación del octaedro  $IrO_6$  alrededor del eje c un ángulo  $11^\circ$ , lo cual incrementa el tamaño de la celda unidad. [Zocco et al., 2014], [Qi et al., 2011] Tiene una extraña correlación electrónica



**Figura 1.11:** Estructura cristalina de  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$ .

La rotación del octaedro  $\text{IrO}_6$  lo que corresponde a una distorsión en el plano del ángulo de ligadura de  $\text{Ir}_1\text{-O}_2\text{-Ir}_1$  juega un rol importante en determinar la estructura electrónica y magnética del compuesto. El ángulo de ligadura de  $\text{Ir}_1\text{-O}_2\text{-Ir}_1$  puede cambiar con un campo magnético, alta presión, campo eléctrico o **strain epitaxial??**



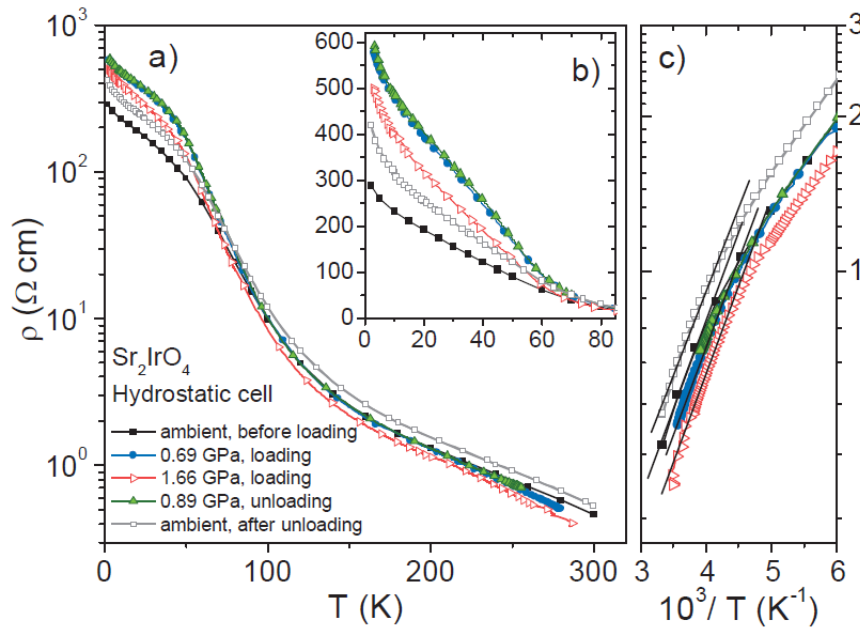
**Figura 1.12:** Gap

#### 1.4.2. Transporte eléctrico Zocco

Recientemente se ha señalado que el ángulo de la unión  $\text{Ir-O-Ir}$  es el que se encarga de controlar el salto electrónico y la interacción magnética entre los átomos de Ir, lo cual permite que las propiedades físicas cambien vía la introducción de vacancias de oxígenos o sustituciones químicas o mediante la aplicación de campo magnético y presión [Qi et al., 2011].

Medidas de la resistividad a lo largo del plano  $ab$  fueron realizadas por Zocco [Zocco et al., 2014] cubriendo un rango de temperaturas de  $1\text{K} \leq T \leq 300\text{K}$  y sometiendo a la muestra a presiones de hasta 55 GPa. Las mediciones para las presiones de hasta 1,66 GPa

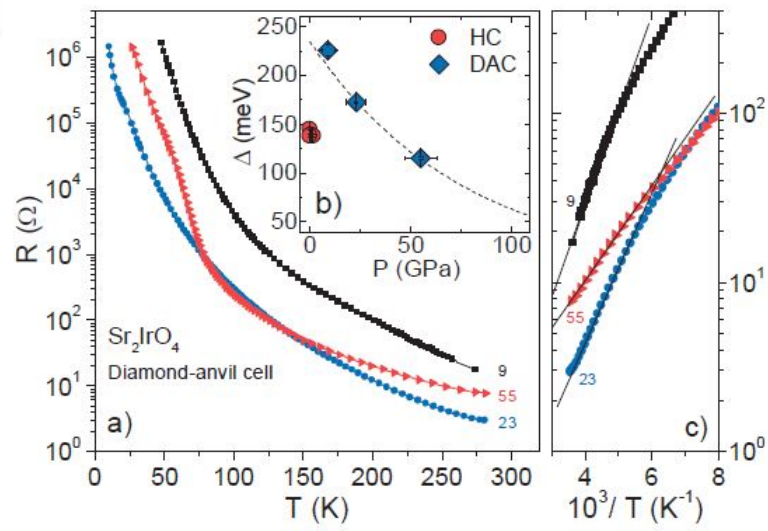
fueron realizadas en una celda hidr stica con pist n cil ndrico, mientras que para las presiones superiores se utiliz  una celda mec nica de diamante. Todas las curvas obtenidas para el caso de las mediciones de hasta 1,66GPa muestran un comportamiento no met lico a lo largo de todo el rango de temperaturas. El gap obtenido es del orden de  $(140 \pm 5)$  meV que es similar a los reportados en trabajos como [ponerr alguna citaver KINI 2006](#)



**Figura 1.13**

### 1.4.3. Propiedades de fase desoxigenada

Trabajos realizados introduciendo muy pocas vacancias de ox geno en cristales de  $\text{Sr}_2\text{IrO}_{4-\delta}$  con  $\delta \leq 0,04$  han evidenciado que la transici n MIT est  caracterizada por un alta anisotrop a en la resistividad que contin a disminuyendo por varios  rdenes de magnitud por debajo de la temperatura de transici n MIT  $T_{MI} = 105\text{K}$ . El material muestra un alto comportamiento no lineal de las curvas I-V para tres umbrales de corriente de orden de 10mA y una abrupta transici n en la resistividad se presenta a  $T^* = 52\text{K}$  separando la temperatura en dos reg menes con difentens curvas no-lineales I-V [Qi et al., 2011] . Las vacancias producen un cambio en el  ngulo Ir-O-Ir .Al disminuir el n mero de ox genos se introduce desorden [poner lo del los  ngulos que varian el tamano d ela celdad unidad](#)



**Figura 1.14**

## 1.5. Motivación (resumen de lo realizado)

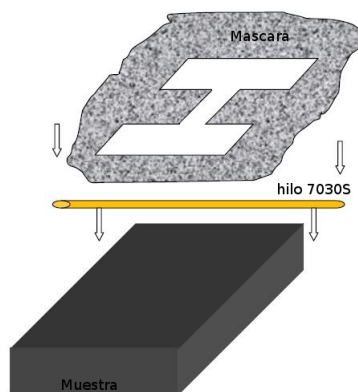
El potencial acción (spike) es generado cuando el potencial de la membrana alcanza a un cierto umbral.



## Detalles experimentales

### 2.1. Muestra y contactos

Las muestras utilizadas consisten en monocristales de  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  (provistas por el CNRS de Saclay, Francia). Para realizar los contactos metálicos de platino sobre las muestras, se diseñaron máscaras las cuales se utilizaron para realizar el sputtering sobre las muestras.



**Figura 2.1:** Esquema de disposición de máscaras para realizar el sputtering.

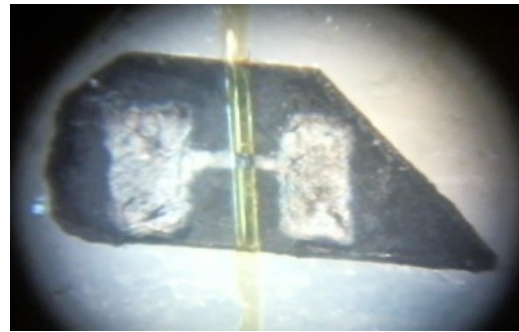
La forma de las máscaras fue pensada de forma tal que el espacio utilizado para adozar los contactos sea el mayor posible y el canal de separación entre los mismos sea lo más pequeño posible, para que se cumplieran éstas dos premisas se determinó que la máscara

debía ser como lo indica el siguiente esquema Figura(2.4),y para que el canal de separación entre los contactos sea lo suficientemente estrecho se decidió realizar con pegamento 7030S un hilo para que funcionara a modo de máscara también, una vez colocadas ambas máscaras sobre la muestra como indica el esquemase realizó el sputtering.

Para el sputtering realizado en la muestra se utilizó un disco de platino, la corriente en el dispositivo fue de 30mA durante 100 segundos de manera de obtener un depósito de 15nm, considerando este espesor suficiente para que no migrasen partículas a la muestra y que sea a la vez un buen contacto. En la Fig (2.2) se puede observar una de las muestras del monocristal que tiene un tamaño de 2mm x 1 mm y el resultado del sputtering realizado.



(a) Muestra X2 de monocristal de  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$ .



(b) Resultado del sputtering, se puede ver el hilo de 7030S aún colocado.

**Figura 2.2:** Muestra X2 antes y después del sputtering.

Para realizar el trabajo se utilizaron tres muestras de monocristales de  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  a las cuales llamamos X2, X3 y X4, cuyas características con respecto al tamaño son similares.

En el presente trabajo se utilizaron diferentes protocolos de pulsos que especificaremos más adelante. Pero todos tienen en común la técnica de medir entre pulso y pulso con un voltaje mínimo llamado de lectura.

## 2.2. Mediciones IV

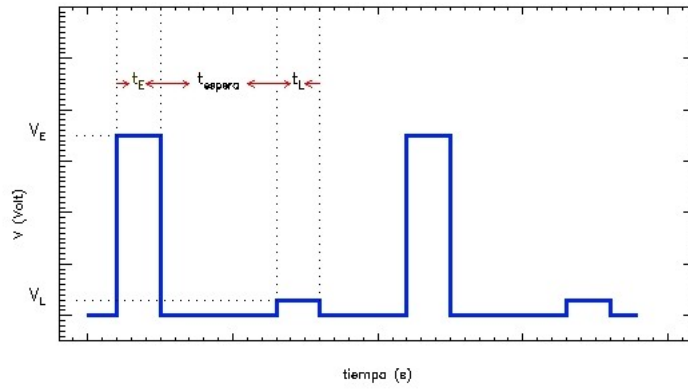
[Cao & Schlottmann, 2018].

fghjhgfj [Zocco et al., 2014] rtyutryutryutryutryutr gjhghgj [McLachlan, 1987]  
portocolos pulsos

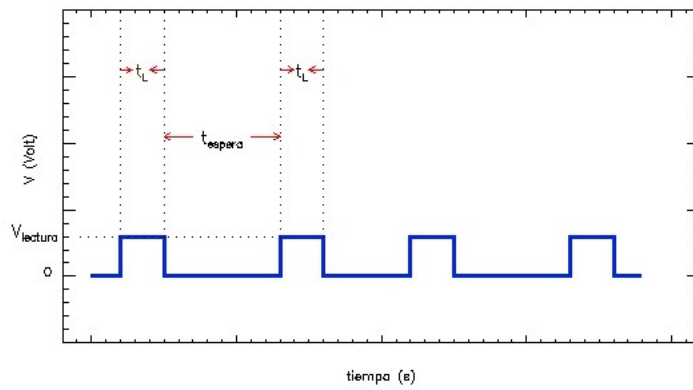
## 2.3. Mediciones R(T)

fghjhgfj





**Figura 2.3:** Protocolo pulsos.



**Figura 2.4:** Protocolo relajacion pulsos.



## Resultados

### 3.1. Memoria no-volátil y unipolar



**Figura 3.1:** Unipolaridad



**Figura 3.2:** Unipolaridad



**Figura 3.3:** Unipolaridad

- 3.2. Caracterización de la conducción eléctrica**
- 3.3. Volatilidad vs calentamiento**
- 3.4. Memoria volátil: comportamiento neuronal**



**Figura 3.4:** Unipolaridad



# 4

## Discusión y conclusiones

fagsfahsgdfhasfdha.





# 5

## Perspectivas

Estudiar la relajación con la temperatura. dgdhfdhghgf



## Agradecimientos

En primer lugar, mi infinito agradecimiento a mi director de tesis el Dr. Carlos Acha por sus explicaciones, su paciencia y por haberme permitido trabajar en el Laboratorio de Bajas Temperaturas. Me hubiera gustado conocerlo en otra etapa de mi días de estudiante. A todos los integrantes del laboratorio , los técnicos ,los estudiantes que por allí pasaron Victoria Beckeris y Juan.

A mis amigas y hermanas del corazón Andrea Inés Borgazzi y María Evangelina Lipchak, que siempre me alentaron y con quienes pude desahogarme en mis momentos más tristes. Andrea te extraño, estás tan lejos. Eva hace mucho que no tenemos tiempo de calidad con unos buenos mates.

A mis compañeros de trabajo María Laura, Laura, Paula, Jorge y Ernesto quienes saben de que se trata este último paso.

Un especial agradecimiento a mi terapeuta la Dra. María Laura Stein quien me ayudó en este proceso.



# Bibliografía

- Burkitt, A. N. (2006). A review of the integrate-and-fire neuron model: I. homogeneous synaptic input. *Biological Cybernetics*, 95(1), 1–19.
- Cao, G. & Schlottmann, P. (2018). The challenge of spin-orbit-tuned ground states in iridates: a key issues review. *Reports on Progress in Physics*, 81(4), 042502.
- Chua, L. O. (1971). Memristor - the missing circuit element. *IEEE Transactions on Circuit Theory*, ct-18(5), 507–519.
- Gebhard, F. (1997). *The Mott Metal-Insulator Transition: Models and Methods*. Springer Series in Solid-State Sciences. Springer.
- Guiot, V. e. a. (2013). Avalanche breakdown in  $\text{GaTa}_4\text{Se}_8 - \chi\text{Te}_\chi$  narrow-gap mott insulators. *Nature Communications.*, 4(1722).
- ITRS (2013). The international technology roadmap for semiconductors.
- Martín del Brío, B. & Sanz, A. (2006). *Redes neuronales y sistemas borrosos / B. Martín del Brío, A. Sanz Molina ; pról. de Lotfi A. Zadeh*. RA-MA editorial.
- McLachlan, D. S. (1987). An equation for the conductivity of binary mixtures with anisotropic grain structures. *Journal of Physics C: Solid State Physics*, 20(7), 865.
- Pan, F., Gao, S., Chen, C., Song, C., & Zeng, F. (2014). Recent progress in resistive random access memories: Materials, switching mechanisms, and performance. *Materials Science and Engineering: R: Reports*, 83, 1 – 59.
- Qi, T. F., Korneta, O. B., Chikara, S., Ge, M., Parkin, S., De Long, L. E., Schlottmann, P., & Cao, G. (2011). Electron doped  $\text{Sr}_2\text{IrO}_{4-\delta}$  ( $0 \leq \delta \leq 0,04$ ): Evolution of a disordered JeffâĀL= 1/2 mott insulator into an exotic metallic state. *Journal of Applied Physics*, 109(7), 07D906.

- Sawa, A. (2008). Resistive switching in transition metal oxides. *Materials Today*, 11(6), 28–36.
- Stoliar, P., Tranchant, J., Corraze, B., Janod, E., Besland, M.-P., Tesler, F., Rozenberg, M., & Cario, L. (2017). A leaky-integrate-and-fire neuron analog realized with a mott insulator. *Advanced Functional Materials*, 27(11), 1604740.
- Tranchant, J., Janod, E., Corraze, B., Stoliar, P., Rozenberg, M., Besland, M.-P., & Cario, L. (2015). Control of resistive switching in am4q8 narrow gap mott insulators: A first step towards neuromorphic applications. *Physica Status Solidi (a)*, 212(2), 239–244.
- Tranchant, J., Sandrini, J., Janod, E., Sacchetto, D., Corraze, B., Besland, M.-P., Ghanbaja, J., De Micheli, G., Gaillardon, P.-E., & Cario, L. (2017). Control of resistive switching in mott memories based on TiN/AM<sub>4</sub>Q<sub>8</sub>/TiN MIM devices (invited). *ECS Transactions*, 75(32), 3–12.
- Zhou, Y. & Ramanathan, S. (2015). Mott memory and neuromorphic devices. *Proceedings of the IEEE*, 103(8), 1289 – 1310.
- Zocco, D., J Hamlin, J., D White, B., J Kim, B., Jeffries, J., Weir, S., K Vohra, Y., W Allen, J., & Maple, M. (2014). Persistent non-metallic behavior in at high pressures Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> and Sr<sub>3</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub> at high pressures. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 26, 255603.