

04,10

# Влияние термической обработки на мемристоривные свойства конденсаторных структур $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}$

© А.В. Ситников<sup>1,2</sup>, Ю.Е. Калинин<sup>1</sup>, И.В. Бабкина<sup>1</sup>, А.Е. Никонов<sup>1</sup>, А.Р. Шакуров<sup>1,\*</sup>, М.Н. Копытин<sup>1</sup><sup>1</sup> Воронежский Государственный Технический Университет, Воронеж, Россия<sup>2</sup> Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“, Москва, Россия

\* E-mail: Aleks.shakurov@mail.ru

Поступила в Редакцию 19 июля 2024 г.

В окончательной редакции 10 августа 2024 г.

Принята к публикации 11 августа 2024 г.

Представлены результаты исследования влияния термической обработки до 500°C на мемристоривные свойства структуры конденсаторного типа  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{SiO}_2$ . Показано, что термическая обработка до 350°C в течение 60 min не изменяет циклическую выносливость образцов ( $> 10^4$ ), увеличивает отношение высокоомного резистивного состояния ( $R_{\text{off}}$ ) к низкоомному резистивному состоянию ( $R_{\text{on}}$ ) с 25 в исходном состоянии до 60 в термообработанном и уменьшает значения напряжений резистивного переключения до  $\pm 4$  V. Термическая обработка также увеличивает стабильность параметров  $R_{\text{on}}(t)$ ,  $R_{\text{off}}(t)$ . Отжиги при температурах выше 350°C приводят к значительному увеличению напряжений резистивных переключений. Данный процесс определяется значительным (на несколько порядков величины) увеличением  $\rho$  НК при отжигах в диапазоне температур от 400 до 500°C.

**Ключевые слова:** Резистивное переключение, мемристоры, нанокompозит, ниобат лития.

DOI: 10.61011/FTT.2024.10.59076.199

## 1. Введение

Структуры, обладающие эффектами резистивного переключения (РП), весьма привлекательны для создания нового поколения энергонезависимой памяти большой плотности с малым энергопотреблением при записи/считывании информации [1–3]. С другой стороны, такие структуры могут быть использованы для создания мемристоров, функционально эмулирующих действие синапса (соединения) в биологической нейронной сети (мозге) [3–7]. В последние годы большое внимание для использования в качестве мемристоривных устройств привлекли структуры типа металл-диэлектрик-металл (М/Д/М), что позволяет использовать массивы мемристоров в матричном исполнении как элементы многоуровневой памяти при решении задач искусственного интеллекта: распознавания образов и естественного языка, принятия решений, обобщения, прогнозирования и др. [8–19].

К настоящему времени накоплен достаточно большой экспериментальный материал, содержащий, в том числе, и доказательную базу ключевой роли вакансий (ионов) кислорода в резистивном переключении многих объектов на основе оксидов металлов. Интересно, что в случае МОМ структур РП обусловлено процессами электромиграции вакансий кислорода в диэлектрической прослойке, или катионов металлов (таких как Cu, Ag) в диэлектрик из активного электрода [4,5,19–22]. В результате формируются (разрушаются) нитевидные про-

водящие каналы (филаменты) в диэлектрическом слое. Пространственное расположение филаментов случайно и в большинстве случаев определяется дефектами в диэлектрической прослойке или на интерфейсе М/Д. Данное обстоятельство является одной из основных причин значительной нестабильности свойств мемристоров при их циклических РП [2,14].

В случае структур металл-нанокompозит-металл (М/НК/М) на переход в проводящее состояние в диэлектрической области состава НК ( $x < x_c$ ) определяющее влияние оказывают перколяционные цепочки, заданные пространственным положением и концентрацией наногранул металла, что в свою очередь должно обеспечивать более высокую стабильность переключений. Этот подход позволил в структурах М/НК/М на основе НК  $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  реализовать биполярное резистивное переключение с отношением  $R_{\text{off}}/R_{\text{on}} \approx 100$ , где  $R_{\text{off}}$  — высокоомное, а  $R_{\text{on}}$  — низкоомное резистивное состояние [23–25]. При этом число устойчивых циклов РП (выносливость) превышает  $10^6$ , а время удержания резистивных состояний — более  $10^4$  s [24,25]. Кроме того, синтезированные М/НК/М-структуры обладали высокой степенью пластичности резистивных состояний (возможность индуцировать множество стабильных промежуточных резистивных состояний в диапазоне между  $R_{\text{off}}$  и  $R_{\text{on}}$ ) [25–28]. Исследования структуры М/НК/М с помощью высокоразрешающей ПЭМ показало наличие диэлектрической прослойки a-LiNbO<sub>3</sub> толщиной 10–15 nm которая формируется на

начальной стадии роста нанокompозита на нижнем металлическом электроде в результате процесса самоорганизации [29,30]. Следовательно, более правильно структуру М/НК/М представить, как М/НК/Д/М, где в качестве диэлектрика (Д) выступает прослойка  $\alpha$ -LiNbO<sub>3</sub>. Действительно, структуры М/НК/Д/М, где  $\alpha$ -LiNbO<sub>3</sub> толщиной 10–15 nm формировался путем напыления его из оригинальной мишени, демонстрируют подобные мемристинные свойства.

Предположение о формировании многофиламентного РП в структурах М/НК/Д/М за счет проводящих каналов НК дают высокую степень вариативности в оптимизации свойств за счет использования НК с различным составом металлической и диэлектрической фаз. Наиболее исследованным является НК  $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ , который с одной стороны имеет гомогенную наногранулированную структуру [31], а с другой достаточно высокую термическую стабильность структурных и электрических свойств [32]. Действительно, проведенные исследования выявили, что в структуре  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{Sitall}$  в диапазоне концентраций металлической фазы НК от 18 до 43 at.% наблюдаются обратимые биполярные переключения. Величина напряжений переключения из  $R_{\text{off}}$  в  $R_{\text{on}}$  состояния и наоборот достигает  $\pm 4$  V при  $x = 37\text{--}42$  at.%. Отношение  $R_{\text{off}}/R_{\text{on}} \approx 100$ , выносливость более  $10^4$  обратимых циклов переключения. Однако выявлена некоторая релаксация значений временных зависимостей индуцированных резистивных состояний, что связано с электрическими свойствами функциональной прослойки LiNbO<sub>3</sub>, которая в исходном состоянии представляет собой сложную гетерогенную структуру, где нанокристаллы NbO<sub>2</sub> внедрены в аморфную матрицу [статья в редакции]. Одним из возможных способов изменения мемристорных свойств сложных, многокомпонентных и нанофрагментированных структур является термическая обработка.

Поэтому основной целью настоящей работы является выявление влияния термической обработки на мемристинные свойства структуры  $\text{M}/(\text{CoFeB})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{LiNbO}_3/\text{M}$ .

## 2. Образцы и методика их исследования

Методом ионно-лучевого распыления были получены конденсаторные структуры М/НК/Д/М, где в качестве НК выступали пленки  $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  (далее для краткости будем обозначать эти композиты, как  $(\text{CoFeB})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ ) в качестве Д — LiNbO<sub>3</sub>. В качестве слоев металлических электродов (М) использовались трехслойные проводники Cr-Cu-Cr в качестве нижнего электрода, верхний электрод сформирован из пленки Cu.

Для получения экспериментальных образцов использовали три технологических операции ионно-лучевого

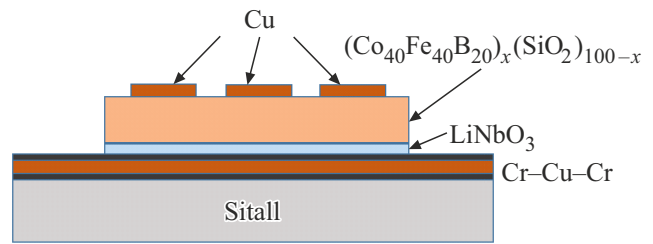


Рис. 1. Топология экспериментальных образцов М/НК/Д/М.

распыления. На первом этапе на ситалловые подложки осаждали многослойную структуру Cr-Cu-Cr. Перед напылением проводили ионную очистку поверхности подложки, затем пластины перемещали в позицию распыления Cr мишени, где осаждали металлическую пленку хрома толщиной  $\sim 100$  nm в течение 10 min. Затем с помощью держателя подложки с управляемым вращением перемещали образцы в зону нанесения Cu из соответствующей мишени, где осуществлялось осаждение пленки меди толщиной  $\sim 1000$  nm в течение 30 min, после чего повторяли операцию нанесения слоя Cr ( $\sim 100$  nm в течение 10 min).

На втором этапе ситалловые подложки с нанесенным металлическим покрытием (4 пластины размером  $60 \times 48$  mm<sup>2</sup>) располагались в ряд для получения площади поверхности осаждения  $240 \times 48$  mm<sup>2</sup>. Сверху подложки закрывали теньевым экраном с отверстиями диаметром 8 mm, расположенными в 24 ряда по 6 отверстий в ряду. Напыление пленки LiNbO<sub>3</sub> проводилось из оригинальной мишени. Осаждение осуществлялось при вращении карусели держателя подложек со скоростью один оборот в течение пяти минут при прохождении подложек в зоне распыления мишени LiNbO<sub>3</sub>. Было проведено три цикла осаждения. За один цикл толщина покрытия достигала примерно 5 nm. Синтез диэлектрической прослойки осуществлялся в атмосфере рабочего газа ( $P_{\text{Ar}} \sim 3.9 \cdot 10^{-4}$  Torr) с добавлением кислорода  $P_{\text{O}_2} \sim 1.9 \cdot 10^{-5}$  Torr.

Осаждение пленки НК осуществлялось из составной мишени, где на пластине сплава  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  размером  $280 \times 80 \times 10$  mm<sup>3</sup> располагались неравномерно 13 прямоугольных пластинок из монокристаллического кварца размером  $80 \times 10 \times 2$  mm<sup>3</sup>. Такая композиционная мишень позволяет плавно и непрерывно изменять концентрацию металлической фазы композита вдоль поверхности подложек [33,34]. При синтезе слоя НК в атмосферу рабочего газа ( $P_{\text{Ar}} \sim 3.9 \cdot 10^{-4}$  Torr) добавляется кислород при давлении  $P_{\text{O}_2} \sim 0.9 \cdot 10^{-5}$  Torr. За время напыления 15 min. формировалась пленка толщиной  $\sim 250$  nm. Изменение концентрации металлической фазы в композите лежало в диапазоне от 18.9 до 42.1 at.%.

Верхние контактные площадки из Cu на многослойной структуре наносились через металлическую маску

с размером отверстий  $0.5 \times 0.2 \text{ mm}^2$  по технологии, описанной выше.

Надо отметить, что вакуумная установка ионно-лучевого распыления имеет безмасляную систему откачки. Предварительный вакуум не хуже  $1 \cdot 10^{-6}$  Торр. Для напыления использовались особо чистые газы не хуже 99.999%. Перед напылением проводили предварительное распыление поверхности мишеней и ионную очистку подложек.

Элементный состав НК определяли с помощью энергодисперсионной рентгеновской приставки Oxford INCA Energy 250 на сканирующем электронном микроскопе JEOL JSM-6380 LV. Точность определения состава образцов определялась их размером, дискретностью расположения на подложках и составляла величину  $x \pm 1 \text{ at.}\%$ . Структурный анализ проводился рентгенографическим методом на рентгеновском дифрактометре BRUKER D2 PHASER.

Измерение вольт-амперных характеристик (ВАХ) структур М/НК/М и их мемристивных свойств проводили с помощью многофункционального источника-измерителя Keithley 2450 и аналитической зондовой станции в режиме ограничения тока. ВАХ структур М/НК/М измеряли при заземленном нижнем электроде и развертке напряжения смещения  $U$  верхнего электрода по линейному закону в последовательности от  $0 \rightarrow +U_{\text{max}} \rightarrow -U_{\text{max}} \rightarrow 0 \text{ V}$  с шагом  $0.1 \text{ V}$ . Скорость изменения напряжения составляла  $10 \text{ V/s}$ .

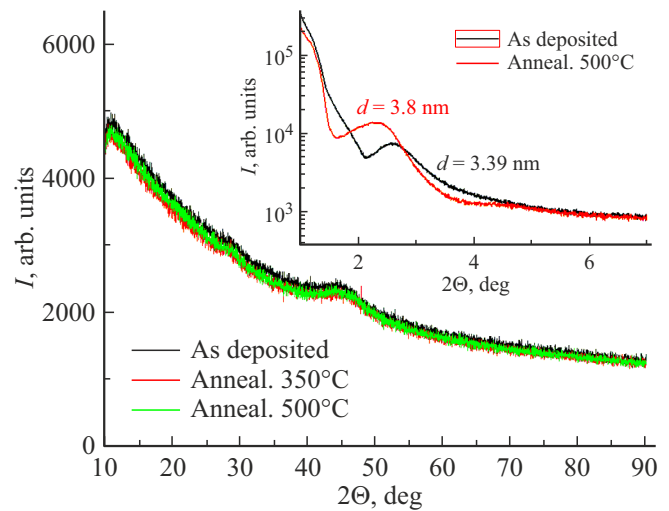
Термическую обработку проводили с использованием вольфрамового резистивного нагревателя в вакууме при давлении остаточного газа не хуже  $10^{-5}$  Торр.

### 3. Результаты и их обсуждение

В качестве объекта исследования была выбрана структура  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{Si}$ , обладающая оптимальными мемристивными свойствами в исходном состоянии.

Рентгенографическая характеристика структуры нанокompозита  $(\text{CoFeB})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  (НК) и диэлектрика  $\text{LiNbO}_3$  (Д) была проведена на пленках толщиной порядка  $1 \mu\text{m}$ , осажденных на поверхность пластин из монокристаллического  $\text{Si}(100)$ .

Рентгеновская дифракция не выявила кристаллической структуры НК при термической обработке до  $500^\circ\text{C}$  (рис. 2). Наличие малоугловой дифракции рентгеновского излучения от пленок НК  $(\text{CoFeB})_{38.9}(\text{SiO}_2)_{61.1}$  свидетельствует о достаточно однородном расположении гранул металла в НК. По положению максимума можно оценить среднее расстояние между гранулами, т.е. фактически ширину диэлектрического слоя между металлическими наночастицами в НК. Эти оценки дали величины порядка  $3.4 \text{ nm}$  в исходном состоянии и увеличение до  $3.8 \text{ nm}$  после отжига при  $500^\circ\text{C}$  (рис. 2 „вставка“). Действительно, при увеличении температуры отжига НК происходят с одной стороны экстенсивный

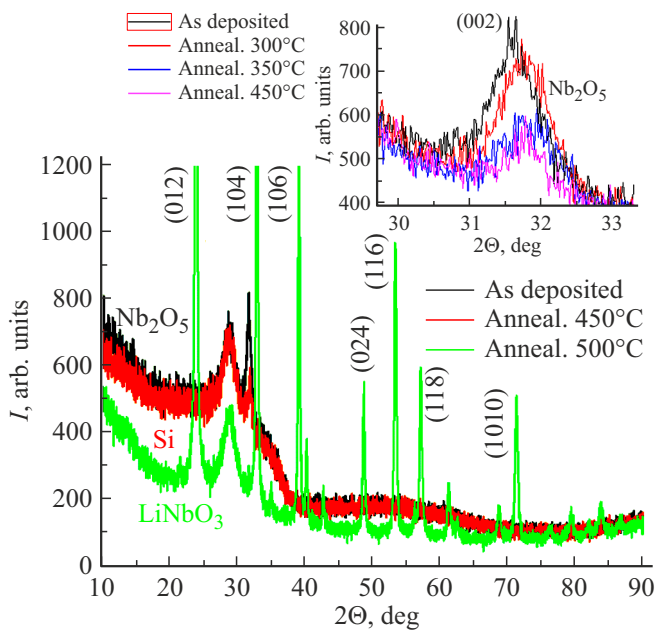


**Рис. 2.** Дифрактограммы пленок НК  $(\text{CoFeB})_{38.9}(\text{SiO}_2)_{61.1}$  в исходном состоянии и после термообработки в течение 60 min. На вставке представлены малоугловые дифрактограммы пленок НК  $(\text{CoFeB})_{38.9}(\text{SiO}_2)_{61.1}$  в исходном состоянии и после термообработки в течение 60 min.

диффузионный процесс перераспределение внедренных атомов чужой фазы на границу раздела металлических частиц и диэлектрической матрицы, а с другой стороны мы находимся достаточно близко к температуре ( $500\text{--}550^\circ\text{C}$ ), при которой наблюдается кристаллизация аморфных металлических частиц сплава  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  в данном НК, что приводит к катастрофическим изменениям структуры и образованию нанокристаллов металла размером до нескольких десятков нанометров [23]. То, какой из данных процессов определяет увеличение расстояния между металлическими частицами НК требует дальнейших исследований и не влияет на интерпретацию результатов данной работы.

Рентгеновская дифракция от пленки  $\text{LiNbO}_3$  (рис. 3) до температур термической обработки  $450^\circ\text{C}$  наиболее точно описывается при ее моделировании средой, где нанокристаллы моноклинного  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  внедрены в аморфную матрицу. В процессе кристаллизации при термической обработке при  $500^\circ\text{C}$  в течение 60 min. образуется кристаллическая фаза  $\text{LiNbO}_3$ . Интересно отметить, что дифракционный пик от нанобластей  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  уменьшает свою интенсивность при увеличении термической обработки до  $350^\circ\text{C}$ , а затем вплоть до температуры  $450^\circ\text{C}$  интенсивность этого максимума не изменяется (вставка на рис. 3). Из этих наблюдений можно предположить, что нанобласти  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  разрушаются при довольно умеренных температурах отжига ( $300\text{--}350^\circ\text{C}$ ), в результате чего растет степень гомогенизации аморфной фазы, которая потом при  $500^\circ\text{C}$  кристаллизуется в кристаллическую структуру  $\text{LiNbO}_3$ .

Анализ изменения характеристик ВАХ структуры  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{Si}$  и ее основных мемристивных свойств от температуры



**Рис. 3.** Дифрактограмма от пленки  $\text{LiNbO}_3$  в исходном состоянии и после термообработки в течение 60 min. На вставке представлена дифрактограмма от пленки  $\text{LiNbO}_3$  в исходном состоянии и после термообработки в течение 60 min в области максимума, соответствующего фазе  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ .

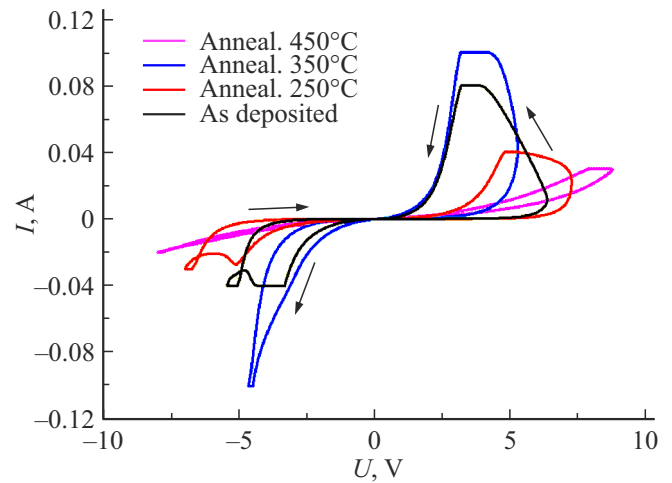
термического воздействия в течение 60 min, представленных на рис. 4 и 5, позволяет выявить ряд интересных особенностей. Обнаружено, что до температуры отжига  $250^\circ\text{C}$  изменение параметров биполярного резистивного переключения приводит к незначительному увеличению напряжений переключения и уменьшению значений относительного изменения индуцированных сопротивлений. При этом основные особенности ВАХ не меняются. При термической обработке при температурах  $300^\circ\text{C}$  и  $350^\circ\text{C}$  происходит существенное уменьшение напряжений переключения, возрастают значения  $R_{\text{off}}/R_{\text{on}}$ , но для напряжения переключения  $U_{\text{on-off}}$  на кривой ВАХ не удается выявить определенного значения. При отжиге выше  $400^\circ\text{C}$  мемристивный эффект в структуре деградирует.

Основным выявленным недостатком исследуемой структуры в исходном состоянии была низкая временная стабильность индуцированных в ней состояний. Анализ временных зависимостей индуцированных резистивных состояний для исследуемой структуры, представленный на рис. 6, показал, что с повышением температуры отжига стабильность данного параметра возрастает.

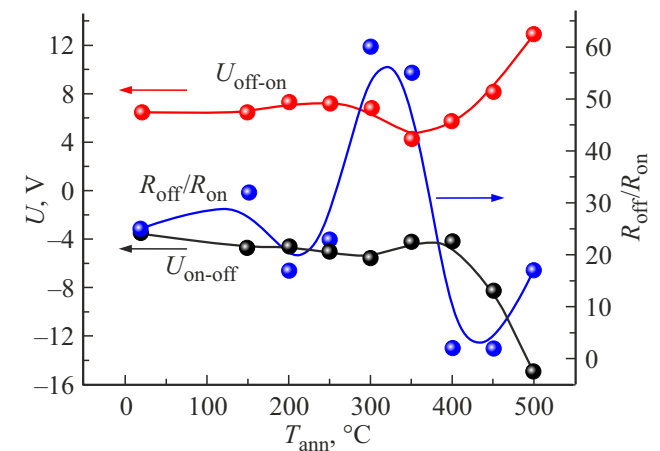
Для изучения вопроса изменения параметров РП исследуемой мемристивной структуры  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{Sitall}$  было проведено измерение квазистатических ВАХ. Шаг по напряжению составлял 0.1 V. При текущем напряжении в течение 10 s измерялось 10 значений электрического сопротивления (рис. 7). Эти значения обрабатывались путем расчета относительного изменения величины

сопротивления при фиксированном напряжении на образце (рис. 8).

Анализ данных зависимостей показывает, что для образца в исходном состоянии при положительном смещении напряжения на верхнем электроде необратимые изменения резистивного состояния (уменьшение значений  $R$ ) наблюдаются при весьма незначительных напряжениях и продолжают с возрастающей скоростью до  $\sim 3.5$  V. В этой области напряжений зависимость  $(R_{i+1} - R_i)/R_i$ , легко представить как суперпозицию двух резонансных кривых. Переход из состояния  $R_{\text{on}}$  в  $R_{\text{off}}$  (отрицательное напряжение на верхнем электроде) имеет некоторую область величины напряжения от 0 до  $-2$  V, в которой необратимые изменения напряжения незначительны. И только при напряжениях от  $-2$  до  $-4$  V наблюдается переход структуры из

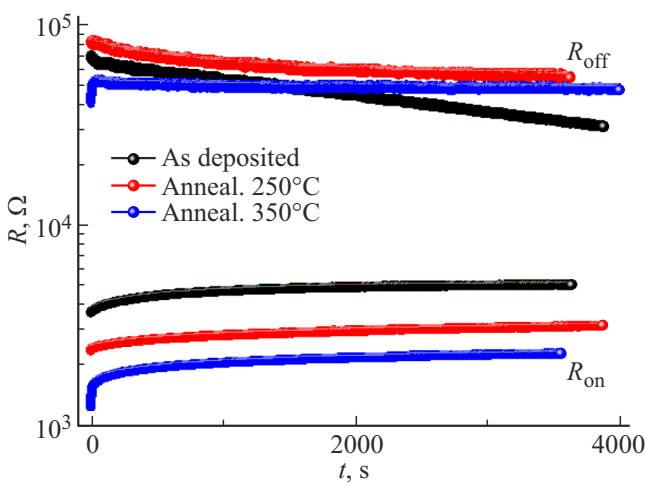


**Рис. 4.** ВАХ мемристивного элемента  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{Sitall}$  в исходном состоянии и после термообработки в течение 60 min.

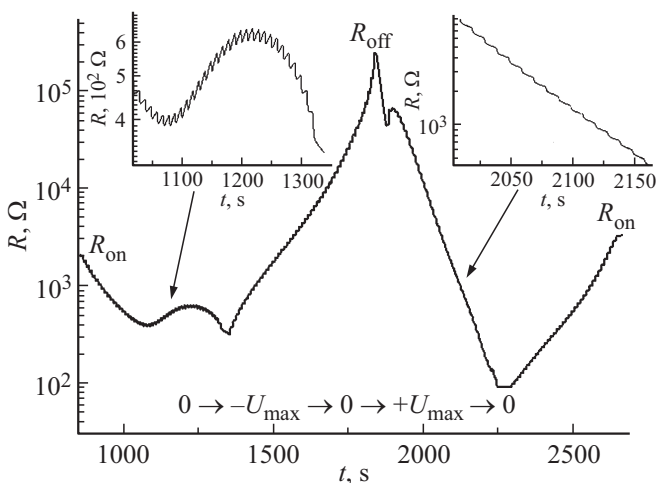


**Рис. 5.** Концентрационные зависимости параметров  $R_{\text{off}}/R_{\text{on}}$ ,  $U_{\text{off-on}}$  и  $U_{\text{on-off}}$  для структуры  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{Sitall}$  в исходном состоянии и после термообработки в течение 60 min.

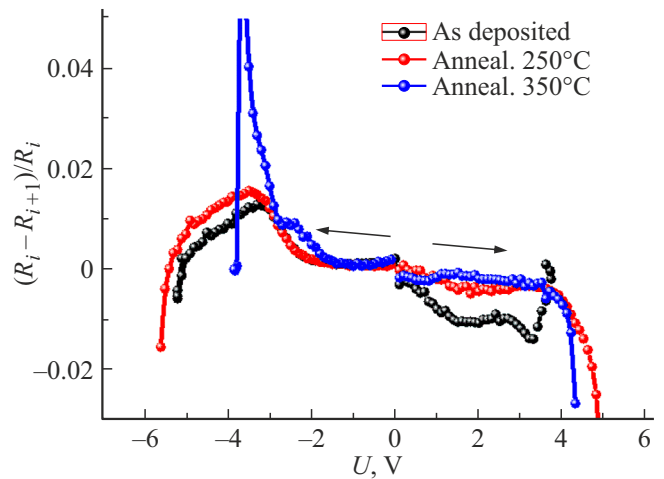
низкоомного в высокоомное резистивное состояние. Это хорошо коррелирует с ходом временных зависимостей индуцированных резистивных состояний (рис. 6, темные кривые), где для образца в исходном состоянии скорость уменьшения  $R_{off}(t)$  выше, чем увеличение  $R_{on}(t)$ . После термической обработки образца при  $250^{\circ}\text{C}$  в течение 60 min происходит уменьшение распределения энергий процесса перехода  $R_{off} \rightarrow R_{on}$  при положительном напряжении на верхнем электроде и напряжение перехода сдвигается в область больших напряжений. Это изменение хорошо коррелирует с относительным изменением зависимостей ВАХ (рис. 4) и повышением стабильности индуцированных состояний (рис. 6, крас-



**Рис. 6.** Временная зависимость индуцированных резистивных состояний для структуры  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{Sitall}$  в исходном состоянии и после термообработки в течение 60 min.



**Рис. 7.** Временная зависимость изменения электрического сопротивления структуры  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{Sitall}$  при изменении прикладываемого напряжения. На вставках представлены фрагменты кривых в увеличенном масштабе для демонстрации характера зависимости на различных участках.



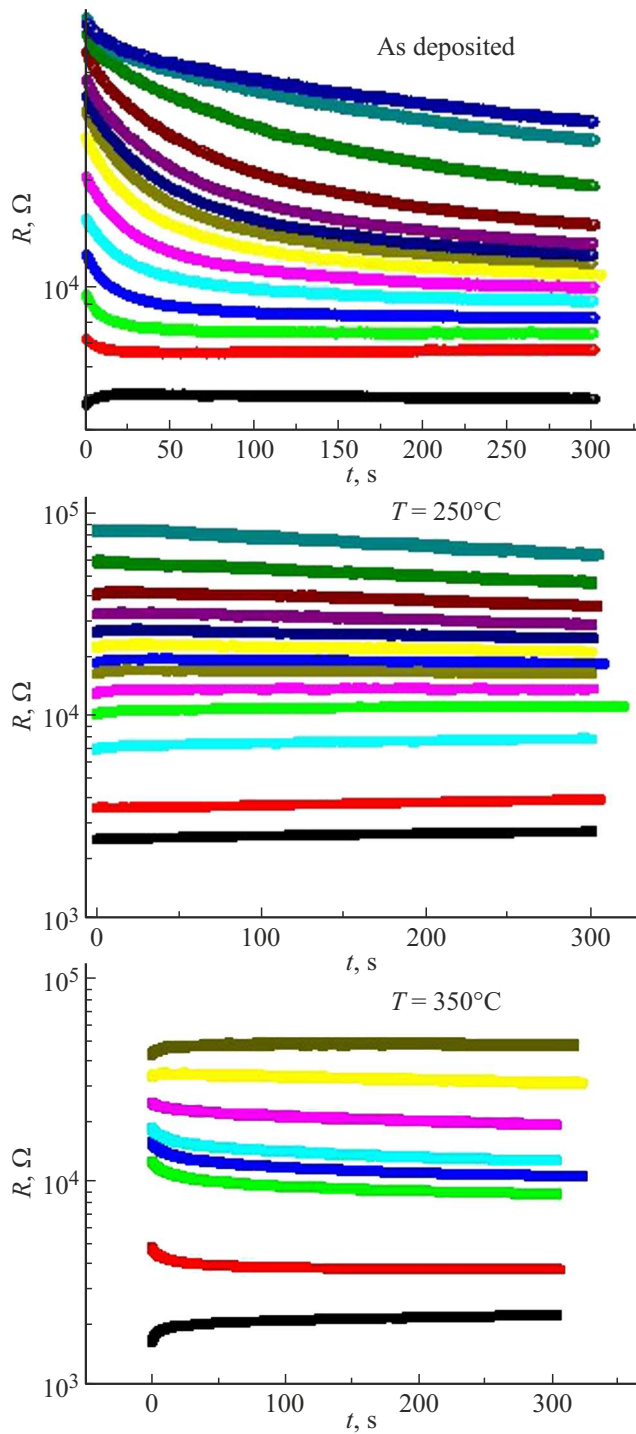
**Рис. 8.** Относительная скорость изменения электрического сопротивления для структуры  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{Sitall}$  от приложенного напряжения в исходном состоянии и после термообработки в течение 60 min.

ные кривые). Повышение температуры отжига до  $350^{\circ}\text{C}$  несколько понижет напряжение переходов  $R_{on} \rightarrow R_{off}$  и  $R_{off} \rightarrow R_{on}$  относительно образцов, отожженных при  $250^{\circ}\text{C}$ , особенно в области высокоомного РП. В этой же области проявляется два максимума на зависимости относительной скорости изменения электрического сопротивления от напряжения при  $-2.5\text{ V}$  и  $-3.5\text{ V}$ . Однако, данные изменения не приводят к возникновению релаксации резистивных состояний образца при малых напряжениях измерения резистивных состояний и как следствие временная стабильность индуцированных R остается высокой (рис. 6, синие кривые).

Увеличение стабильности зависимостей  $R_{on}(t)$  и  $R_{off}(t)$  положительным образом сказалось на характеристиках пластичности резистивных состояний исследуемой структуры (рис. 9). Мало того, что сохраняется возможность индуцировать практически любые резистивные состояния  $R_i$  в промежутке между значениями  $R_{on}$  и  $R_{off}$  после отжига структуры до  $350^{\circ}\text{C}$ , но и становятся более стабильны зависимости  $R_i(t)$ .

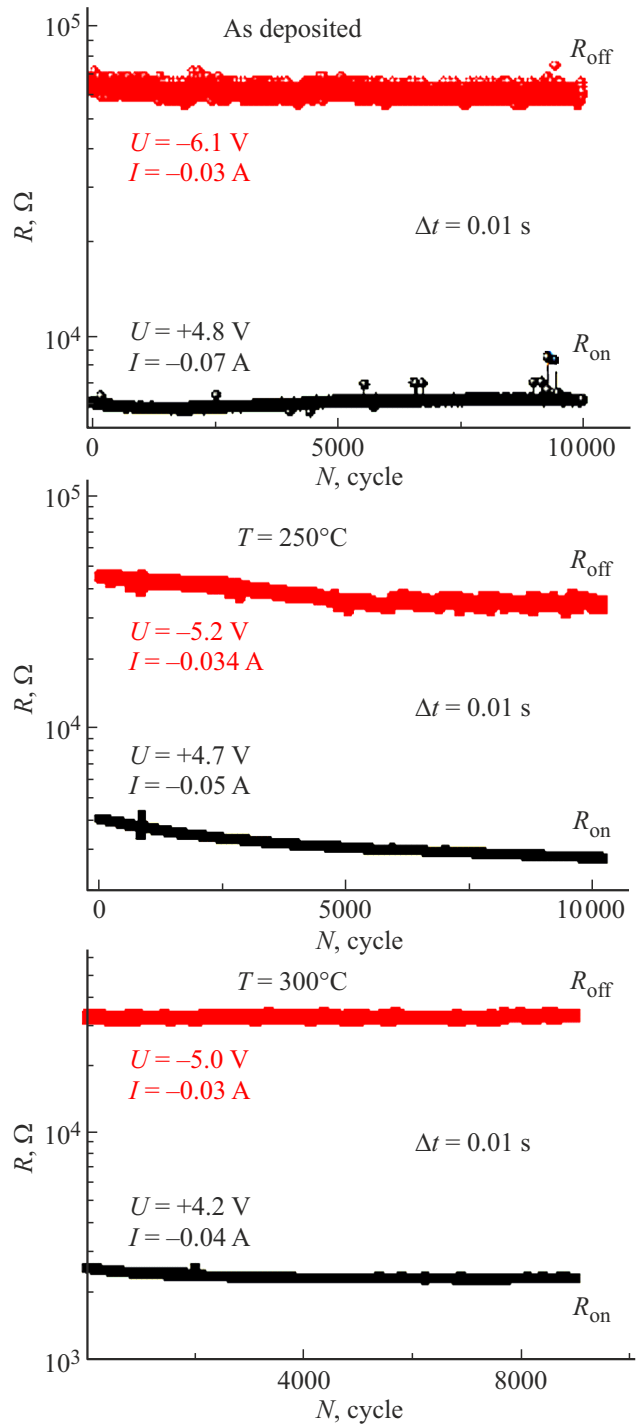
Циклическая выносливость образцов после термической обработки до  $300^{\circ}\text{C}$  также не претерпела существенных изменений и достигала не менее  $10^4$  обратимых циклов РП (рис. 10).

Такое разноплановое поведение исследуемой структуры не может быть объяснено исходя из структурных изменений в Д прослойке и НК, представленных на рис. 2 и 3. Некоторое улучшение комплекса мемристивных свойств, наблюдаемое при отжиге до  $350^{\circ}\text{C}$ , хорошо коррелирует с уменьшением размера и плотности включений моноклинных наночастиц  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  в матрице  $\alpha\text{-LiNbO}_3$ . Однако существенных изменений структуры ни в  $\alpha\text{-LiNbO}_3$ , ни в НК  $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}$  в диапазоне температур  $350\text{--}450^{\circ}\text{C}$  рентгенодифракцион-



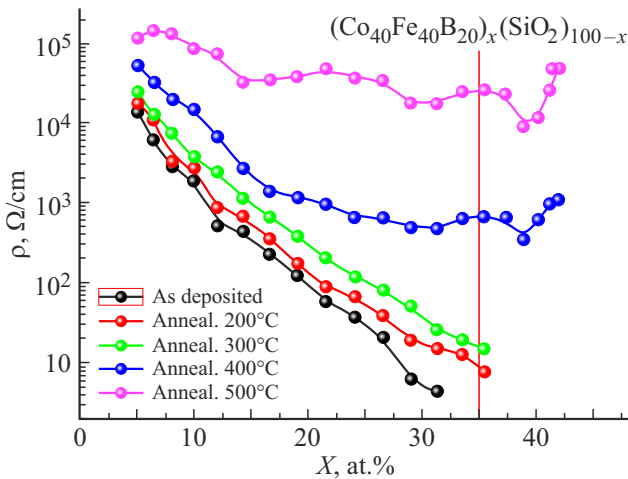
**Рис. 9.** Временные зависимости индуцированных резистивных состояний для мемристорных структур  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{SiAlN}$  в исходном состоянии и после термообработки в течение 60 мин.

ные исследования не выявили. В этом случае интересно посмотреть на изменение электрических свойств НК после термической обработки (рис. 11). Видно, что после  $400^\circ\text{C}$  значительно (на несколько порядков величины) изменяется удельное сопротивление  $\rho$  нанокompозита,



**Рис. 10.** Переключения резистивных состояний в мемристорных структурах  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{SiAlN}$  в исходном состоянии и после термообработки в течение 60 мин.

причем его структура остается неизменной. Это можно объяснить уменьшением концентрации локализованных состояний в диэлектрической матрице НК, участвующих в процессе электропереноса [23]. Ясно, что при этом уменьшается напряжение на прослойке  $\alpha\text{-LiNbO}_3$ , и мы



**Рис. 11.** Концентрационные зависимости удельного электрического сопротивления НК  $(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$  после термообработки при различных температурах в течение 60 min.

фиксируем значительное увеличение напряжения (измеряемое на всей структуре) РП.

#### 4. Заключение

Исследования влияния термической обработки на мемристивные свойства структуры  $\text{Cu}/(\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20})_{35.5}(\text{SiO}_2)_{64.5}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}/\text{Cu}/\text{Cr}/\text{Sitall}$  показали, что отжиг до  $350^\circ\text{C}$  не влияет на циклическую выносливость образцов, но увеличивает отношение  $R_{\text{off}}/R_{\text{on}}$  и уменьшает значения напряжений РП. При этом термическая обработка улучшает стабильность параметров  $R_{\text{on}}(t)$ ,  $R_{\text{off}}(t)$  и временную стабильность индуцированных сопротивлений в промежутке между значениями  $R_{\text{on}}$  и  $R_{\text{off}}$  при измерениях пластичности резистивных состояний структуры. Высказано предположение, что это связано с увеличением степени гомогенизации аморфной фазы диэлектрической прослойки ниобата лития за счет уменьшением размера и концентрации нанодоменов  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ , распределенных в аморфной матрице  $\text{LiNbO}_3$  при температурах отжига ( $300\text{--}350^\circ\text{C}$ ).

Термическая обработка при температурах выше  $350^\circ\text{C}$  приводят к значительному увеличению напряжений РП. Данный процесс определяется значительным (на несколько порядков величины) ростом удельного сопротивления  $\rho$  НК при отжигах от  $400$  до  $500^\circ\text{C}$ . Подобная деградация свойств связывается с уменьшением концентрации локализованных состояний в диэлектрической матрице НК, участвующих в процессе электропереноса, в результате термического воздействия.

#### Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Министерства Науки и Высшего образования в рамках государственного задания FZGM-2023\_0006.

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

#### Список литературы

- [1] J.S. Lee, S. Lee, T.W. Noh. *Appl. Phys. Rev.*, **2**, 031303 (2015).
- [2] D. Ielmini. *Semicond. Sci. Technol.*, **31**, 063002 (2016).
- [3] D. Ielmini, R. Waser. *Resistive Switching: From Fundamentals of Nanoionic Redox Processes to Memristive Device Applications*. Wiley-VCH Verlag Weinheim, Germany (2016). 755 p.
- [4] J. del Valle, J.G. Ramirez, M.J. Rozenberg, I.K. Shuller. *J. Appl. Phys.*, **124**, 211101 (2018).
- [5] Y. Li, Z. Wang, R. Midya, Q. Xia, J.J. Yang. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **51**, 503002 (2018).
- [6] S.G. Kim, J.S. Han, H. Kim, S.Y. Kim, H.W. Jang. *Adv. Mater. Technol.*, **3**, 1800457 (2018).
- [7] S.H. Tan, P. Lin, H. Yeon, S. Choi, Y. Park, J. Kim. *APL Materials* **6**, 120901 (2018).
- [8] C. Li, M. Hu, Y. Li, H. Jiang, N. Ge, E. Montgomery, J. Zhang, W. Song, N. Davila, C.E. Graves, Z. Li, J.P. Strachan, P. Lin, Z. Wang, M. Barnell, Q. Wu, R.S. Williams, J.J. Yang, Q. Xia. *Nat. Electr.*, **1**, 52 (2018).
- [9] Z. Wang, S. Joshi, S.E. Savel'ev, W. Song, R. Midya, Y. Li, M. Rao, P. Yan, S. Asapu, Y. Zhuo, H. Jiang, P. Lin, C. Li, J.H. Yoon, N. Upadhyay, J. Zhang, M. Hu, J.P. Strachan, M. Barnell, Q. Wu, H. Wu, S. Williams, Q. Xia, J.J. Yang. *Nat. Electr.*, **1**, 137 (2018).
- [10] C. Li, D. Belkin, Y. Li, P. Yan, M. Hu, N. Ge, H. Jiang, E. Montgomery, P. Lin, Z. Wang, W. Song, J.P. Strachan, M. Barnell, Q. Wu, R.S. Williams, J.J. Yang, Q. Xia. *Nat. Commun.*, **9**, 2385 (2018).
- [11] I. Boybat, M.L. Gallo, S.R. Nandakumar, T. Moraitis, T. Parnell, T. Tuma, B. Rajendran, Y. Leblebici, A. Sebastian, E. Eleftheriou. *Nat. Commun.*, **9**, 2514 (2018).
- [12] M.A. Zidan, Y.J. Jeong, J. Lee, B. Chen, S. Huang, M.J. Kushner, W.D. Lu. *Nat. Electr.*, **1**, 411 (2018).
- [13] M.A. Zidan, J.P. Strachan, W.D. Lu. *Nat. Electr.*, **1**, 22 (2018).
- [14] W. Banerjee, Q. Liu, H. Hwang. *J. Appl. Phys.*, **127**, 051101 (2020).
- [15] Y. Zhang, Z. Wang, J. Zhu, Y. Yang, M. Rao, W. Song, Y. Zhuo, X. Zhang, M. Cui, L. Shen, R. Huang, J. Yang. *Appl. Phys. Rev.*, **7**, 011308 (2020).
- [16] D. Ham, H. Park, S. Hwang, K. Kim. *Nat. Electron.*, **4**, 635 (2021).
- [17] Q. Xia, J.J. Yang. *Nat. Mater.*, **18**, 309 (2019).
- [18] M. Zhuk, S. Zarubin, I. Karateev, Y. Matveyev, E. Gornev, G. Krasnikov, D. Negrov, A. Zenkevich. *Front. Neurosci.*, **14**, 94 (2020).
- [19] A. Mikhaylov, A. Belov, D. Korolev, I. Antonov, V. Kotomina, A. Kotina, E. Gryaznov, A. Sharapov, M. Koryazhkina, R. Kryukov, S. Zubkov, A. Sushkov, D. Pavlov, S. Tikhov, O. Morozov, D. Tetelbaum. *Adv. Mater. Technol.*, **5**, 1900607 (2020).

- [20] D.-H. Kwon, K.M. Kim, J.H. Jang, J.M. Jeon, M.H. Lee, G.H. Kim, X.-S. Li, G.-S. Park, B. Lee, S. Han, M. Kim, C.S. Hwang. *Nat. Nanotechnol.*, **5**, 153 (2010).
- [21] J.-Y. Chen, C.-W. Huang, C.-H. Chiu, Y.-T. Huang, W.-W. Wu. *Adv. Mater.*, **27**, 5028 (2015).
- [22] H. Jiang, L. Han, P. Lin, Z. Wang, M.H. Jang, Q. Wu, M. Barnell, J.J. Yang, H.L. Xin, Q. Xia. *Sci. Rep.*, **6**, 28525 (2016).
- [23] V.V. Rylkov, S. Nikolaev, V.A. Demin, A.V. Emelyanov, A.V. Sitnikov, K.E. Nikiruy, V.A. Levanov, M.Yu. Presnyakov, A.N. Taldenkov, A.L. Vasiliev, K.Yu. Chernoglazov, A. Vedeneev, Yu.E. Kalinin, A.B. Granovsky, V. Tugushev, A.S. Bugaev. *J. Exp. Theor. Phys.*, **126**, 367 (2018).
- [24] V.A. Levanov, A.V. Emel'yanov, V.A. Demin, K.E. Nikirui, A.V. Sitnikov, S.N. Nikolaev, A.S. Vedeneev, Yu.E. Kalinin, V.V. Rylkov. *J. Commun. Technol. Electron.*, **63**, 496 (2018).
- [25] K.E. Nikiruy, A.V. Emelyanov, V.A. Demin, A.V. Sitnikov, A.A. Minnekhanov, V.V. Rylkov, P.K. Kashakrov, M.V. Kovalchuk. *AIP Advances*, **9**, 065116 (2019).
- [26] A.V. Emelyanov, K.E. Nikiruy, A.V. Serenko, A.V. Sitnikov, M.Yu. Presnyakov, R.B. Rybka, A.G. Sboev, V.V. Rylkov, P.K. Kashkarov, M.V. Kovalchuk. *Nanotechnology*, **31**, 045201 (2020).
- [27] K.E. Nikiruy, I.A. Surazhevsky, V.A. Demin, A.V. Emelyanov. *Phys. Status Solidi A*, **217**, 18, 1900938 (2020).
- [28] I.A. Surazhevsky, V.A. Demin, A.I. Ilyasov, A.V. Emelyanov, K.E. Nikiruy, V.V. Rylkov, S.A. Shchanikov, I.A. Bordanov, S.A. Gerasimova, D.V. Guseinov, N.V. Malekhonova, D.A. Pavlov, A.I. Belov, A.N. Mikhaylov, V.B. Kazantsev, D. Valenti, B. Spagnolo, M.V. Kovalchuk. *Chaos, Solitons and Fractals*, **146**, 110890 (2021).
- [29] V.V. Rylkov, S.N. Nikolaev, K.Y. Chernoglazov, V.A. Demin, M.Y. Presnyakov, A.L. Vasiliev, V.V. Tugushev, A.B. Granovsky, A.V. Sitnikov, Y.E. Kalinin, N.S. Perov, A.S. Vedeneev. *Phys. Rev. B*, **95**, 14, 144202 (2017).
- [30] А.В. Ситников, И.В. Бабкина, Ю.Е. Калинин, А.Е. Никонов, М.Н. Копытин, А.Р. Шакуров, О.И. Ремизова, Л.И. Янченко. *ЖТФ*, **92**, 9, 1382 (2022).
- [31] А.В. Ситников. *Материаловедение*, **3**, 49 (2010).
- [32] С.А. Гриднев, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников, О.В. Стогней. НЕЛИНЕЙНЫЕ ЯВЛЕНИЯ В НАНО- И МИКРОГЕТЕРОГЕННЫХ СИСТЕМАХ, ООО „Издательство „БИНОМ. Лаборатория знаний“, Москва. (2012), с. 358.
- [33] Ю.Е. Калинин, А.Н. Ремизов, А.В. Ситников. *ФТТ*, **46**, 11, 2076 (2004).
- [34] N. Domracheva, M. Caporali, E. Rentschler. *Novel Magnetic Nanostructures: Unique Properties and Applications*, Elsevier (2018), p. 490.

*Редактор Ю.Э. Китаев*