

04,08

Исследование пленок оксида алюминия в составе мемристорных структур методом атомно-силовой микроскопии

© Д.О. Филатов, Е.Д. Сорочкина, Д.А. Антонов, И.Н. Антонов, А.В. Круглов, О.Н. Горшков

Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,
Нижний Новгород, Россия

E-mail: dmitry_filatov@inbox.ru

Поступила в Редакцию 4 февраля 2026 г.

В окончательной редакции 6 февраля 2026 г.

Принята к публикации 6 февраля 2026 г.

Методом атомно-силовой микроскопии с измерением силы электрического тока через зонд исследована локальная электропроводность тонкопленочных структур $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2(\text{Y})/\text{Pt}$. На поверхности структур обнаружены участки локального увеличения электропроводности, связанные с утечками по границам зерен в поликристаллических пленках Al_2O_3 . Предложен механизм влияния тонких пленок Al_2O_3 на стабильность электрических характеристик мемристоров на основе структур $\text{Ta}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2(\text{Y})/\text{Pt}$, заключающийся в латеральной локализации проводящих филаментов в слое функционального диэлектрика $\text{ZrO}_2(\text{Y})$ в области дефектов в слое Al_2O_3 . В остальной части структуры слой Al_2O_3 ограничивает диффузию ионов O^{2-} из функционального диэлектрика в верхний электрод и, тем самым, препятствуют латеральному размытию филамента. В свою очередь, это уменьшает дрейф характеристик мемристора в процессе переключения.

Ключевые слова: мемристор, резистивное переключение, филамент, атомно-силовая микроскопия, стабилизированный диоксид циркония, оксид алюминия, стабильность.

DOI: 10.61011/FTT.2026.03.62937.129-25

1. Введение

Мемристор — это твердотельный электронный прибор на основе конденсаторной структуры металл–диэлектрик–металл (МДМ), изолирующий слой которой способен изменять свое сопротивление под действием напряжения, приложенного к обкладкам, и сохранять его после выключения напряжения [1]. На основе мемристоров могут быть созданы новые устройства энерго-независимой компьютерной памяти [2], нейроморфные компьютеры [3] и др.

В настоящее время применение мемристоров сдерживается недостаточной стабильностью их электрических характеристик, таких как сопротивление мемристора в состоянии с высоким и низким сопротивлением (СВС и СНС, соответственно) и напряжения переключения между этими состояниями. Выделяют два типа нестабильности параметров мемристоров [4]:

1) разброс параметров от цикла к циклу при циклическом переключении между СВС и СНС;

2) дрейф (деградация) средних значений вышеуказанных параметров в процессе эксплуатации мемристора.

Функционирование большинства мемристоров, реализованных к настоящему времени, основано на так называемом филаментном механизме переключения. Данный механизм заключается в образовании и разрыве проводящих шнуров (филаментов) в функциональном диэлектрике между электродами мемристорной структуры [5]. В мемристорах на основе оксидов металлов, принцип действия которых основан на окислительно-восстановительных реакциях на интерфейсе функционального

диэлектрика с одним из электродов (англ. Reduction-Oxidation, RedOx) филаменты состоят из вакансий кислорода [6]. Дрейф характеристик мемристора в процессе эксплуатации обусловлен тем, что в процессе циклического переключения вакансионная структура филамента модифицируется не только вблизи его оконечности, но также и по всей длине филамента. В частности, одной из причин дрейфа характеристик мемристора может быть диффузионное латеральное расплывание филамента в процессе циклических переключений [7].

В качестве одного из способов уменьшения скорости деградации мемристоров, рассматривается введение в мемристорную структуру тонких пленок высокопрочных диэлектриков (например, Al_2O_3 [8–21]). Ввиду низкой подвижности ионов O^{2-} в Al_2O_3 [9], слой Al_2O_3 ограничивает диффузионный обмен ионами O^{2-} между слоями мемристорной структуры, тем самым, стабилизируя структуру филаментов. В свою очередь, это уменьшает дрейф характеристик мемристора [19].

Несмотря на значительное количество работ, опубликованных по данной теме, механизм влияния слоев Al_2O_3 на характеристики мемристоров в настоящее время не вполне ясен. Авторы [10,11,16] утверждают, что в процессе электроформовки филаменты зарождаются в слоях функционального диэлектрика с относительно высокой подвижностью ионов O^{2-} (HfO_x , TiO_x , TaO_x и т.п.). Когда филамент прорастает до слоя Al_2O_3 , происходит его необратимый локальный пробой с образованием проводящего канала. При дальнейшем циклическом переключении, этот канал остается в проводящем состоянии вследствие относительно

высокой энергии активации дрейфа/диффузии ионов O^{2-} в Al_2O_3 [10], а изменение сопротивления мемристора происходит путем удлинения и укорочения филамента в слое функционального диэлектрика. При этом сечение проводящего канала в слое Al_2O_3 остается неизменным. Это препятствует латеральному уширению филамента и, тем самым, уменьшает дрейф параметров мемристора.

Вместе с тем, авторы отмеченных выше работ уделяют недостаточно внимания вопросу влияния однородности толщины и электрофизических характеристик слоя Al_2O_3 на процессы стабилизации филаментов. При наличии дефектов в тонких слоях Al_2O_3 , вероятно прорастание филамента через слой Al_2O_3 в местах расположения таких дефектов.

Ранее, в [21] было исследовано влияние толщины слоя Al_2O_3 на стабильность параметров мемристоров на основе структур $Ta/Al_2O_3/ZrO_2(Y)/Pt$. Было отмечено положительное влияние добавления слоя Al_2O_3 на стабильность параметров мемристоров, но механизм такого влияния остался невыясненным. Один из возможных механизмов может быть связан с локальными флуктуациями толщины и/или электропроводности пленок Al_2O_3 , которые могут служить местами зарождения филаментов в слое функционального диэлектрика $ZrO_2(Y)$ и ограничивать филаменты в плоскости структуры.

В настоящей работе методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) с измерением силы тока между АСМ зондом и образцом исследованы морфология поверхности и латеральное распределение локальной электропроводности тонкопленочных структур $Al_2O_3/ZrO_2(Y)$ на подложках с Pt покрытием. Метод АСМ позволяет исследовать микрорельеф поверхности твердых тел с нанометровым пространственным разрешением, а при использовании АСМ зондов из электропроводящего материала, возможно одновременное измерение локальной электропроводности тонких изолирующих пленок на проводящих подложках, в том числе — обусловленной наличием дефектов в изолирующих пленках [7].

2. Материалы и методы

Объектами исследований являлись тонкопленочные структуры $Al_2O_3/ZrO_2(Y)/Pt$. Как уже упоминалось выше (см. введение), целью настоящей работы было объяснить механизм влияния дополнительного слоя Al_2O_3 на стабильность характеристик мемристоров на основе структур $Ta/Al_2O_3/ZrO_2(Y)/Pt$, исследованных ранее в [21]. В первую очередь, интересовал вопрос о сплошности пленок Al_2O_3 в мемристорных структурах, исследованных в [21]. При этом, сплошность понималась не только как отсутствие пор в пленке Al_2O_3 , но и как однородность вертикальной электропроводности пленки Al_2O_3 по площади структуры. Для достижения указанной цели, в настоящей работе методом АСМ с регистрацией силы тока через зонд исследована поверхность

слоя Al_2O_3 . Однако, приборные структуры, исследованные в [21], непригодны для АСМ исследований, поскольку поверхность слоя Al_2O_3 в этих структурах закрыта верхним танталовым электродом. Поэтому в рамках настоящей работы специально для АСМ исследований были сформированы образцы без верхнего электрода. При этом, слои Al_2O_3 и $ZrO_2(Y)$ формировались в тех же условиях, что и в приборных структурах, исследованных в [21]. Ожидалось, что структура и свойства слоев Al_2O_3 в образцах с верхним Ta электродом и без него будут сходными, а, следовательно, по результатам АСМ исследований образцов с открытой поверхностью слоя Al_2O_3 можно будет судить о процессах в мемристорах на основе структур $Ta/Al_2O_3/ZrO_2(Y)/Pt$, исследованных в [21].

Образцы для АСМ исследований, формировались на стандартных подложках Si(001), на которых были предварительно сформированы изолирующие слои SiO_2 толщиной 500 nm, адгезионные слои Ti и электропроводящие слои TiN толщиной 25 nm каждый. Для формирования тонкопленочных структур $Al_2O_3/ZrO_2(Y)/Pt$ использовалась вакуумная установка Torr International 2G1-1G2-EB4-TN1. Слои Al_2O_3 с номинальной толщиной $d_A = 3, 6$ и 9 nm (как и в структурах $Ta/Al_2O_3/ZrO_2(Y)/Pt$, исследованных в [21]) и $ZrO_2(Y)$ (12% mol. стабилизирующего оксида Y_2O_3) с номинальной толщиной 2 nm формировались методом ВЧ магнетронного осаждения, слои Pt толщиной 40 nm — методом магнетронного осаждения на постоянном токе. Более подробно режимы формирования структур описаны в [21]. Кроме структур $Al_2O_3/ZrO_2(Y)/Pt$, в качестве образца для сравнения исследовалась также пленка $ZrO_2(Y)/Pt$ с номинальной толщиной 2 nm.

АСМ исследования проводились при помощи установки NT-MDT Solver Pro в атмосферных условиях в контактном режиме. Использовались АСМ зонды NT MDT DEP 30 с проводящим покрытием из алмаза, легированного В. Значение силы взаимодействия между АСМ зондом и образцом составляло ~ 10 nN. Между АСМ зондом и слоем Pt прикладывалось напряжение $U = 0.1$ V. В процессе сканирования, наряду с микрорельефом поверхности образца $z(x, y)$, где x, y — координаты острия АСМ зонда в плоскости поверхности образца, z — высота поверхности в точке с координатами x, y , измерялись карты распределения силы электрического тока между АСМ зондом и подслоем Pt $I(x, y)$ (токовые изображения). Значение U выбиралось достаточно малым, чтобы избежать модификации резистивного состояния тонкопленочных диэлектрических слоев в процессе сканирования.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 представлены результаты исследования методом АСМ микрорельефа поверхности и локальной электропроводности структур $Al_2O_3/ZrO_2(Y)/Pt$ с раз-

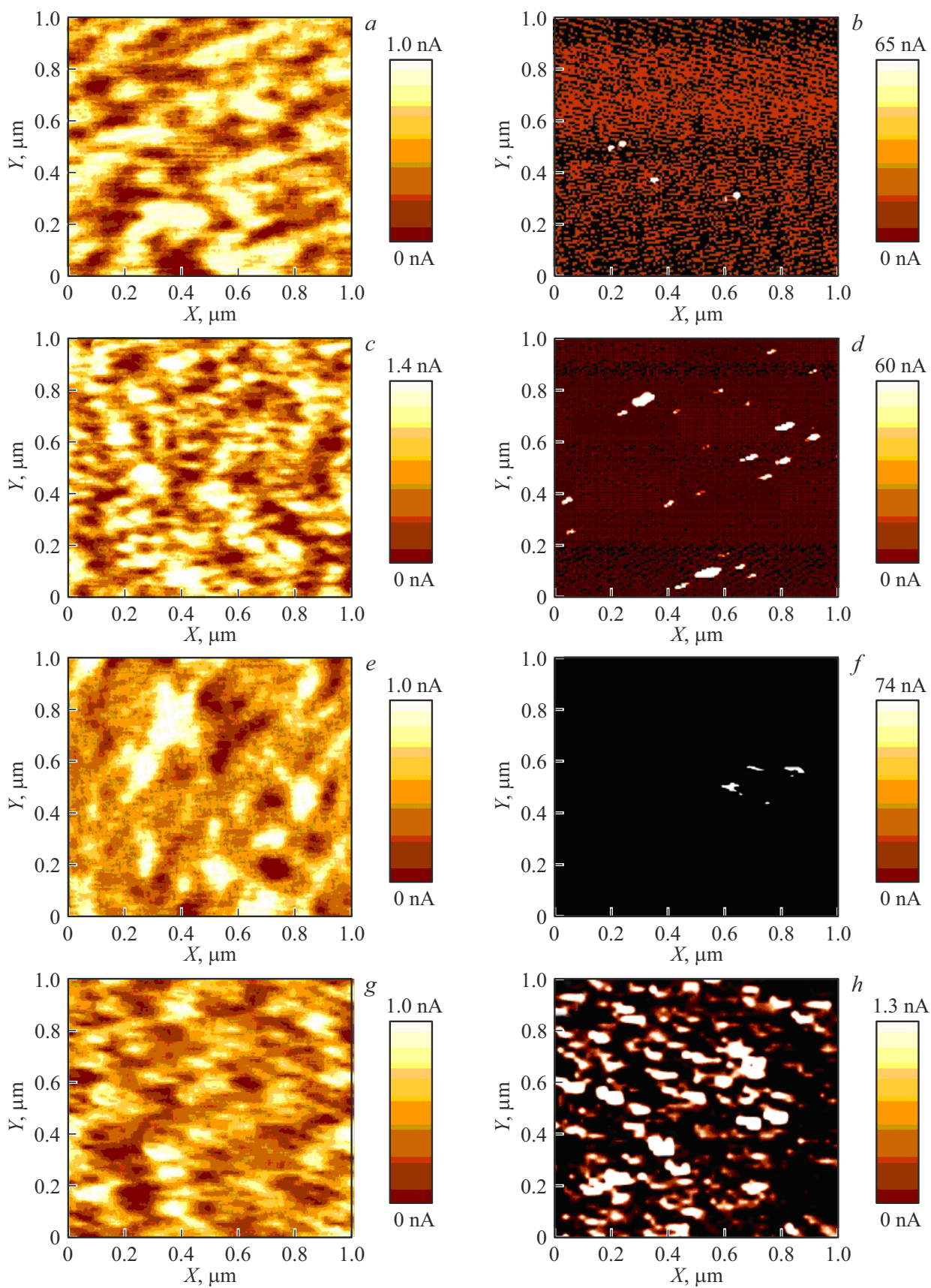


Рис. 1. Микрорельеф (a, c, e, g) и токовые изображения (b, d, f, h) структуры $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2(\text{Y})/\text{Pt}$. d_{A} , nm: a, b — 9; c, d — 6; e, f — 3; g, h — 0. $U = 0.1$ V.

Поверхностная плотность токовых каналов N_s на токовых изображениях поверхности образцов с различными значениями толщины слоя Al_2O_3 d_A

№ образца	d_A , nm	d_C μm	N_s cm^{-2}
1	3	0.22 ± 0.05	$(2.9 \pm 0.5) \cdot 10^8$
2	6	0.12 ± 0.03	$(1.3 \pm 0.8) \cdot 10^9$
3	9	0.16 ± 0.03	$(2.1 \pm 0.5) \cdot 10^8$
4	0	0.12 ± 0.04	$(1.1 \pm 0.2) \cdot 10^{10}$

личными значениями d_A , а также структуры $\text{ZrO}_2(\text{Y})/\text{Pt}$. Слои Al_2O_3 , так же как и слой $\text{ZrO}_2(\text{Y})$, имели зернистую поверхность, отражающую поликристаллическую структуру материала пленок (рис. 1, *a, c, e, g*). Средний размер кристаллитов Al_2O_3 d_C , оцененный по данным АСМ, составляет 120–220 nm, кристаллитов $\text{ZrO}_2(\text{Y})$ — ~ 120 nm (таблица).

На токовых изображениях поверхности пленок Al_2O_3 (рис. 1, *b, d, f*) наблюдались области локального увеличения силы тока через АСМ зонд I (токовые каналы), которые могут быть связаны с утечками тока по границам между зернами Al_2O_3 . Следует отметить, что токовое изображение поверхности пленки $\text{ZrO}_2(\text{Y})/\text{Pt}$ было неоднородным (рис. 1, *h*), что также может быть связано с зернистой структурой пленки.

Заметим также, что поверхностная плотность токовых каналов N_s на поверхности образца $\text{ZrO}_2(\text{Y})/\text{Pt}$ была значительно больше, чем на поверхности образцов $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2(\text{Y})/\text{Pt}$ (рис. 1, таблица), что также согласуется с меньшими размерами зерен на поверхности пленки $\text{ZrO}_2(\text{Y})$. Данный факт позволяет предположить, что транспорт электронов из АСМ зонда через пленку $\text{ZrO}_2(\text{Y})$ в подложку Pt также происходит, преимущественно, по границам зерен в поликристаллической пленке $\text{ZrO}_2(\text{Y})$. Известно [11], что транспорт электронов в монокристаллическом $\text{ZrO}_2(\text{Y})$ происходит по прыжковому механизму по глубоким уровням в запрещенной зоне диэлектрика, связанным с вакансиями кислорода. Концентрация вакансий кислорода в монокристаллическом $\text{ZrO}_2(\text{Y})$ определяется, в основном, концентрацией Y и составляет порядка половины концентрации Y. Для концентрации легирующего оксида $\text{Y}_2\text{O}_3 \sim 12\%$ mol., одна вакансия кислорода приходится в среднем на 4 элементарные ячейки. С другой стороны, известно, что поликристаллические материалы характеризуются повышенной концентрацией точечных (вакансии, оборванные связи) и протяженных (дислокации, дислинации) дефектов на межзеренных границах.

Поэтому транспорт электронов по межзеренным границам представляется более вероятным, чем по самим зернам. С другой стороны, сами зерна могут иметь внутреннюю структуру (состоять из субзерен). В этом случае вероятно также электронная проводимость по границам между субзернами.

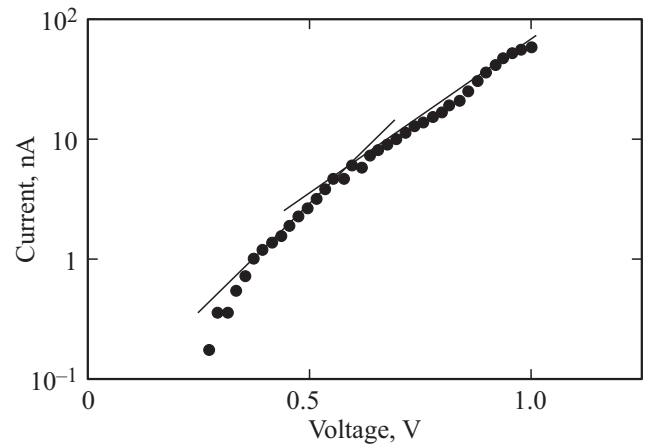


Рис. 2. Вольт-амперная характеристика контакта АСМ зонда к поверхности структуры $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2(\text{Y})/\text{Pt}$, измеренная в токовом канале. $d_A = 6$ nm.

Вольт-амперная характеристика (ВАХ) контакта АСМ зонда к поверхности структуры $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2(\text{Y})/\text{Pt}$ с $d_A = 6$ nm, измеренная в одном из токовых каналов (рис. 2) в области $U = 0.5–1$ V спрямляется в полулогарифмических координатах. Это указывает на прыжковый характер проводимости структуры. При этом в указанном диапазоне U на ВАХ выделяются два участка с различными наклонами (выделено прямыми линиями на рис. 2). Это можно объяснить, предположив, что ток через структуру на этих участках ограничивается сопротивлением различных слоев структуры (Al_2O_3 и $\text{ZrO}_2(\text{Y})$, соответственно). Данный результат косвенно подтверждает сделанное выше предположение, что утечки через слой $\text{ZrO}_2(\text{Y})$ происходят по границам зерен по прыжковому механизму, так же как и в слое Al_2O_3 .

Полученные результаты позволяют предположить следующий механизм влияния слоя Al_2O_3 на электрические параметры мемристоров на основе структур $\text{Ta}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2(\text{Y})/\text{Pt}$, изученных в [21] (рис. 3). В процессе осаждения верхнего электрода Ta, металл заполняет углубления на границах между зернами в слое Al_2O_3 . Именно в этих местах начинается рост проводящих филаментов в $\text{ZrO}_2(\text{Y})$ в процессе электроформовки, поскольку углубления в слое Al_2O_3 , заполненные металлом, являются концентраторами электрического поля в слое функционального диэлектрика $\text{ZrO}_2(\text{Y})$. Когда филамент дорастает до границы раздела $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2(\text{Y})$, происходит локальный необратимый электрический пробой слоя Al_2O_3 с образованием постоянного проводящего канала на границе между зернами в поликристаллической пленке Al_2O_3 [10,11,16]. В процессе дальнейших циклических переключений, окислительно-восстановительные электрохимические реакции, за счет которых происходит удлинение и укорочение проводящего филамента, происходят в слое функционального диэлектрика $\text{ZrO}_2(\text{Y})$, непосредственно примыкающем к интерфейсу $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ZrO}_2(\text{Y})$, ввиду относительно более низкой энергии активации дрейфа/диффузии ионов O^{2-}

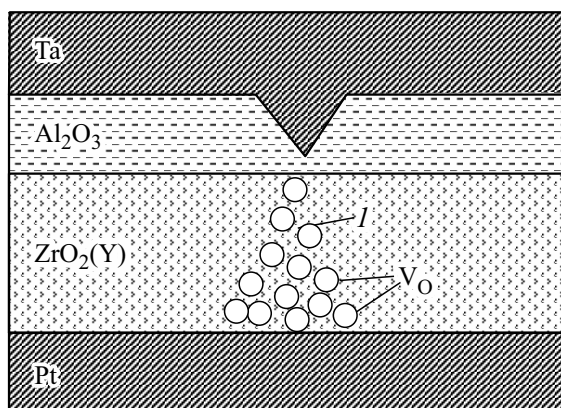


Рис. 3. Схема формирования филамента в мемристоре на основе структуры Ta/Al₂O₃/ZrO₂(Y)/Pt [21] в месте расположения дефекта в слое Al₂O₃. I — филамент.

по кислородным вакансиям в ZrO₂(Y) (~ 0.55 eV [12]) по сравнению с Al₂O₃ (~ 1.7 eV [23]). При этом указанные окислительно-восстановительные реакции оказываются локализованными в плоскости мемристорной структуры в области локального пробоя в слое Al₂O₃.

В свою очередь, это препятствует латеральному размытию филамента в ходе переключения и уменьшает дрейф электрических характеристик мемристора в процессе эксплуатации. В остальной части структуры, слой Al₂O₃ блокирует обмен ионами O²⁻ между слоем функционального диэлектрика ZrO₂(Y) и верхним металлическим электродом.

Как уже упоминалось выше, ранее в [21] изучалось влияние толщины пленок Al₂O₃ на характеристики мемристоров на основе структур Ta/Al₂O₃/ZrO₂(Y)/Pt. Толщины слоев Al₂O₃ в мемристорах, изученных в [21], составляла 3, 6 и 9 нм. Наибольшая стабильность параметров переключения была отмечена для мемристоров на основе структуры с номинальной толщиной слоя Al₂O₃ 6 нм. Как следует из рис. 1 и таблицы, наименьшие размеры зерен Al₂O₃ наблюдается для образца с толщиной слоя Al₂O₃ 6 нм. Также для данного образца отмечается наибольшая плотность токовых каналов (рис. 1, d) по сравнению с образцами № 1 и № 3. Предполагая, что структура и свойства пленок Al₂O₃ в составе мемристорных структур Ta/Al₂O₃/ZrO₂(Y)/Pt, исследованных в [21], сходны со структурой и свойствами пленок Al₂O₃, исследованных в настоящей работе, можно предположить, что структура с толщиной пленки Al₂O₃ 6 нм имела наибольшую плотность дефектов в пленке Al₂O₃, которые потенциально могут служить зародышами проводящих филаментов в слое функционального диэлектрика ZrO₂(Y).

4. Заключение

Результаты проведенных экспериментальных исследований показывают наличие на поверхности исследован-

ных тонкопленочных структур Al₂O₃/ZrO₂(Y)/Pt локальных участков повышенной электропроводности, связанные с утечками по границам зерен в поликристаллической пленке Al₂O₃. Полученные результаты позволяют предложить следующий механизм влияния тонких слоев Al₂O₃ на стабильность электрических характеристик мемристоров на основе структур Ta/Al₂O₃/ZrO₂(Y)/Pt, основанный на предположении о преимущественном формировании проводящих филаментов в слое функционального диэлектрика ZrO₂(Y) в местах локализации дефектов в пленке Al₂O₃. При этом, материал верхнего металлического электрода (Ta) заполняет углубления между зернами Al₂O₃ и формирует неровности на интерфейсе Ta/Al₂O₃, являющиеся концентраторами электрического поля внутри мемристорной структуры, что стимулирует формирование филаментов. В ходе циклического переключения, разрыв и восстановление филаментов происходит на границе Al₂O₃/ZrO₂(Y), в то время как часть филамента, проходящая по межзеренной границе в Al₂O₃ остается неизменной в ходе переключения ввиду значительно меньшей подвижности ионов O²⁻ в Al₂O₃ по сравнению с ZrO₂(Y). В остальной части мемристорной структуры, слой Al₂O₃ блокирует обмен ионами O²⁻ между ZrO₂(Y) и Ta. Таким образом, процесс переключения оказывается латерально локализованным, что препятствует латеральному размытию филамента в ходе переключения и, тем самым, уменьшает дрейф электрических характеристик мемристора.

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания № FSWR-2025-0006. Исследования выполнены с использованием оборудования Центра коллективного пользования Научно-образовательного центра „Физика твердотельных наноструктур“ и Учебного дизайн-центра электроники Нижегородского государственного университета им. Н.И. Лобачевского.

Конфликт интересов

Авторы заявляют об отсутствии у них конфликта интересов.

Список литературы

- [1] D.B. Strukov, G.S. Snider, D.R. Stewart, R.S. Williams. Nature Materials **453**, 80 (2008). DOI: 10.1038/nature06932.
- [2] D. Zhu, Y. Li, W. Shen, Z. Zhou, L. Liu, X. Zhang. J. Semicond., **38**, 7, 071002 (2017). DOI: 10.1088/1674-4926/38/7/071002
- [3] J. Zhu, T. Zhang, Yu. Yang, R. Huang. Appl. Phys. Rev. **7**, 1, 011312 (2020). DOI: 10.1063/1.5118217.
- [4] J.B. Roldán, E. Miranda, D. Maldonado, A.N. Mikhaylov, N.V. Agudov, A.A. Dubkov, M.N. Koryazhkina, M.B. González, M.A. Villena, S. Poblador, M. Saludes-Tapia, R. Picos, F. Jiménez-Molinos, S.G. Stavrinides, E. Salvador, F.J. Alonso, F. Campabadal, B. Spagnolo, M. Lanza, L.O. Chua. Adv. Intell. Syst. **2200338** (2023). DOI: 10.1002/aisy.202200338.

- [5] F. Zahoor, T.Z.A. Zulkifli, F.A. Khanday. *Nanoscale Res. Lett.*, **15**, 1, 90 (2020). DOI: 10.1186/s11671-020-03299-9
- [6] D. Ielmini. *Semicond. Sci. Technol.*, **31**, 6, 063002 (2016). DOI: 10.1088/0268-1242/31/6/063002
- [7] M. Lanza. *Materials*, **7**, 2155 (2014). DOI: 10.3390/ma7032155.
- [8] C.-Y. Huang, J.-H. Jieng, W.-Y. Jang, C.-H. Lin, T.-Y. Tseng. *ECS Solid State Lett.*, **2**, 8, 63 (2013). DOI: 10.1149/2.006308ssl
- [9] R. Nakamura, T. Toda, S. Tsukui, M. Tane, M. Ishimaru, T. Suzuki, H. Nakajima. *J. Appl. Phys.*, **116**, 3, 033504 (2014). DOI: 10.1063/1.4889800.
- [10] Y. Guo, J. Robertson. *Appl. Phys. Lett.*, **105**, 22, 223516 (2014). DOI: 10.1063/1.4903470.
- [11] H.A. Abbas. *Stabilized Zirconia for Solid Oxide Fuel Cells or Oxygen Sensors: Characterization of Structural and Electrical Properties of Zirconia Doped with Some Oxides*. LAP LAMBERT Academic, 2012.
- [12] S. Tikhov, O. Gorshkov, I. Antonov, A. Morozov, M. Koryazhkina, D. Filatov. *Adv. Condens. Matter Phys.*, **2018**, 8, 2028491. DOI: 10.1155/2018/2028491.

Редактор В.В. Емцев