На правах рукописи

ШАКУРОВ Александр Рустамович

ВЛИЯНИЕ СОСТАВА И СТРУКТУРЫ НАНОКОМПОЗИТОВ CoFeB-SiO_2, CoFe-SiO_2, Co-SiO_2 НА МЕМРИСТИВНЫЕ СВОЙСТВА ЭЛЕМЕНТОВ М/НК/Д1/Д2/М

Специальность: 1.3.8. Физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Воронеж – 2026

Работа выполнена в федеральном государственном бюджетном образовательном учреждении высшего образования «Воронежский государственный технический университет»

Научный руководитель	**Ситников Александр Викторович,** доктор физико-математических наук, профессор, профессор кафедры твердотельной электроники имени В.Г. Колесникова ФГБОУ ВО «Воронежский государственный технический университет»
Официальные оппоненты:	**Андреева Наталья Владимировна,** д.ф.-м.н, начальник лаборатории научно-исследовательская лаборатория "Нейроморфная электроника и вычисления в памяти", ФГАОУ ВО Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет «ЛЭТИ» им. В.И. Ульянова (Ленина)
	Рябцев Станислав Викторович, д.ф.-м.н, директор научно-исследовательского института физики, физического факультета ФГБОУ ВО Воронежский государственный университет
Ведущая организация:	Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Национальный исследовательский Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского»

Защита состоится «08» декабря 2026 г. в 15^{00} часов в конференц-зале на заседании диссертационного совета 24.2.286.01, созданного на базе ФГБОУ ВО «Воронежский государственный технический университет», по адресу: г. Воронеж, Московский просп.,д.14, ауд. 216.

С диссертацией можно ознакомиться в научно–технической библиотеке ФГБОУ ВО «Воронежский государственный технический университет» и на сайте https://cchgeu.ru.

Автореферат разослан «_09_» __октября___ 2026 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета Стогней Олег Владимирович

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность

Нейроморфные технологии, использующие искусственные нейроны и синапсы, стали одним из ключевых направлений развития современной электроники, поскольку данные системы позволяют значительно более эффективно обрабатывать информацию и осуществлять вычислительные операции, нежели традиционные компьютеры на основе архитектуры фон Неймана. С начала 2023 г. по данному направлению исследований вышло более 2000 научных статей, причем многие сообщения публикуются в высокорейтинговых журналах группы Nature, а по оценкам источника в 2025 году мировой рынок технологических решений, разработанных на основе искусственного интеллекта составил приблизительно $ 391 млрд. и к 2030 году достигнет $ 1,81 трлн. Исследования в данной области ведут такие технологические лидеры, как IBM и Intel, а также ими занимаются ведущие мировые ВУЗы. В Российской Федерации в 2019 году также принята программа Национальной стратегии развития ИИ на период до 2030 года.

С развитием технологических изысканий в данной области стало ясно, что КМОП-устройства и схемы не оптимальны для эффективной аппаратной реализации нейронных сетей. Так, с переходом от единичных нейронных сетей к нейросетевым кластерам, таким как GPT-4 и другие сверхмасштабные ИНС, стало очевидно, что, несмотря на способность превосходить человеческие возможности в отдельных аспектах, энергопотребление таких ИНС значительно превышает энергопотребление человеческого мозга, имея при этом гораздо меньший масштаб нейронной сети (например, обучение AlphaGo Zero выполнялось с использованием 64 графических процессоров и 19 центральных процессоров, а выполнение логического вывода осуществлялось четырьмя тензорными процессорами).

Таким образом, возникает необходимость в реализации принципиально новой архитектуры вычислений, поскольку классические устройства (на базе архитектуры фон Неймана) имеют ряд ограничений в отношении энергопотребления и быстродействия, связанных с физическим разделением памяти и центрального процессора.

Широкие возможности применения в нейронных системах имеют мемристоры – элементы, способные изменять значение своего электрического сопротивления в зависимости от приложенного заряда и благодаря этому обладающие нелинейными резистивными характеристиками, которые могут быть использованы для моделирования биологически подобных синапсов, что, в свою очередь, может не только повысить вычислительную эффективность нейронных сетей, но и позволить реализовать их на аппаратном уровне, объединив функции памяти и вычислительного ядра в одном элементе.

Наиболее перспективными мемристивными элементами в настоящее время являются структуры конденсаторного типа металл-диэлектрик-металл

(М/Д/М). Однако в них образование проводящих каналов в Д связано с дефектами на интерфейсе М/Д. Поэтому возникает нестабильность переключений, разброс параметров мемристоров от элемента к элементу, высокие напряжения при формовке образцов. Наш подход, позволяющий решить данные проблемы, заключается в использовании нанокомпозитов (НК) металл-диэлектрик (с концентрацией металлической фазы до порога перколяции) в качестве материала электрода. При этом за счет распределения протекания тока в НК по проводящим каналам появляется возможность формировать многофиламентную структуру проводимости в функциональном слое мемристора. Весьма обнадеживающее подтверждение данного подхода было продемонстрировано в структуре Cr/Cu/Cr/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(LiNbO_3)_{100-X}$/$LiNbO_3$/Cr/Cu/Cr/ситалл, где удалось достичь устойчивых биполярных резистивные переключений в широком диапазоне концентраций металлической фазы НК образцов, отношения высокоомного (R_{off}) к низкоомному (R_{on}) резистивному состоянию R_{off}/R_{on} ~100 с количеством устойчивых циклов РП (выносливостью) $>10^5$, времени удержания резистивных состояний более 10^4 секунд, многоуровневого характера РП (пластичность РС) мемристоров. Однако недостатками данной структуры являются относительно невысокая термическая устойчивость свойств и низкая временная стабильность индуцированных резистивных состояний.

В связи с вышеизложенными фактами возникают следующие вопросы: Насколько универсален данный подход в формировании многофиламентного резистивного переключения в структурах М/НК/Д/М? Каковы основные закономерности влияния топологии и состава функциональных слоев на физические процессы обратимого резистивного переключения в данных структурах? Возможно ли на их основе создать образцы с оптимальным комплексом мемристивных свойств? Решению этих вопросов и посвящена данная работа.

Цель работы: установить основные закономерности влияния топологии и состава функциональных слоев на физические процессы обратимого резистивного переключения в конденсаторных мемристивных структурах на основе оксидов металлов при использовании в качестве электрода нанокомпозита металл-диэлектрик и создать тестовый элемент с комплексом оптимальных мемристивных свойств.

Для достижения поставленной цели были сформулированы следующие **задачи**:

1. Методом ионно-лучевого распыления (ИЛР) синтезировать тестовые мемристивные структуры М/НК/Д1/Д2/М [*].

---

[*] (Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$LiNbO_3$/Cr/Cu/Cr/ситалл, Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$LiNbO_3$/α-Si/Cr/Cu/Cr/ситалл,Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$LiNbO_3$/$Ta_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл, Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл, Cu/$(Co_{50}Fe_{50})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл, Cu/$(Co)_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл, Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/$Ta_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл и Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/$Nb_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл).

2. Синтезировать пленки НК - $((Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$, $(Co_{50}Fe_{50})_X(SiO_2)_{100-X}$, $(Co)_X(SiO_2)_{100-X})$ и Д - ($LiNbO_3$, $ZrO_2(Y)$, Ta_2O_5, Nb_2O_5, α-Si), а также многослойных структур (МС) $[(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)]_{50}$, $[(Co_{50}Fe_{50})_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)]_{50}$, $[ZrO_2(Y)/Cr]_{50}$, $[Nb_2O_5/ZrO_2(Y)]_{50}$, $[Nb_2O_5/Cr]_{50}$, $[Ta_2O_5/ ZrO_2(Y)]_{50}$, $[Ta_2O_5/Cr]_{50}$.

3. Выявить структуру и её превращения при термической обработке синтезированных пленок НК, Д и МС.

4. Определить влияние сильных электрических полей на проводимость НК $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$, $(Co_{50}Fe_{50})_X(SiO_2)_{100-X}$.

5. Выявить физические причины влияния состава НК и диэлектрических слоев на параметры обратимых РП в исследуемых структурах.

6. Установить механизмы влияния термической обработки на параметры обратимых РП в исследуемых структурах.

7. Провести сравнительный анализ влияния состава исследуемых мемристивных структур на параметры обратимых РП.

8. Доказать универсальность подхода реализации многофиламентного резистивного переключения в конденсаторных мемристивных структурах на основе оксидов металлов при использовании в качестве электрода нанокомпозита металл-диэлектрик.

Научная новизна работы:

1. Экспериментально показана универсальность метода формирования многофиламентного резистивного переключения в пленках оксидов металлов при использовании в качестве одного из электродов нанокомпозита металл-диэлектрик с концентрацией металлической фазы до порога перколяции.

2. Выявлены механизмы не обратимого изменения электрической проводимости нанокомпозитов $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$ и $(Co_{50}Fe_{50})_X(SiO_2)_{100-X}$ при резистивном нагреве пленки, связанные с процессом выделения на поверхности металлических наногранул атомов металла, внедренных в диэлектрическую матрицу в процессе синтеза НК, уменьшением концентрации локализованных состояний, участвующих в процессе электропереноса в диэлектрической прослойке между металлическими частицами и изменением формы частиц от вытянутых в направлении роста пленки к сферическим.

3. Обнаружена стабилизация проводящих филаментов в $ZrO_2(Y)$ в процессе обратимого резистивного переключения при наличии атомов B в составе НК, которая может быть связана с взаимодействием атомов бора с Zr в кислородных вакансиях.

4. Выявлено, что определяющим механизмом проводимости в исследуемых мемристивных структурах в низкоомном резистивном состоянии при добавлении прослоек Ta_2O_5 и Nb_2O_5 является надбарьерная эмиссия электронов с последующим переносом носителей через пленку (эффект Шоттки), а при добавлении α-Si – туннельная инжекция Фаулера-Норгейма через самоорганизующуюся пленку SiO_2.

Практическая значимость работы:

1. Впервые синтезированы конденсаторные структуры М/НК/Д1/Д2/М и комплексно исследован проявляющийся в них мемристивный эффект [*].

2. Определена удельная рассеиваемая мощность (0,05 Вт/мм^2) для структур М/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/М/ситалл и М/$(Co_{50}Fe_{50})_X(SiO_2)_{100-X}$/М/ситалл, приводящая к необратимому изменению удельного электрического сопротивления НК за счет резистивного нагрева образцов.

3. Показана возможность подавления эффекта стабилизации кислородных вакансий в пленке ZrO_2(Y) при взаимодействии их с бором путем введения прослойки оксидов металлов V группы (Ta_2O_5 и Nb_2O_5), выступающих для оксида циркония резервуаром кислородных вакансий.

4. Степень нелинейности ВАХ в низкоомном состоянии образцов для структур Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$LiNbO_3$/Cr/Cu/Cr/ситалл и Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл увеличивается при введении прослоек Ta_2O_5 и Nb_2O_5, что важно для создания пассивных матриц мемристивных элементов.

5. Получен тестовый мемристивный элемент на основе структуры Cu/$(CoFeB)_{34,4}(SiO_2)_{65,6}$/$ZrO_2$(Y)/$Ta_2O_5$/Cr/Cu/Cr с оптимальным комплексом мемристивных свойств, а именно отношением R_{off}/R_{on} ≈145, устойчивой временной стабильностью резистивных состояний в течение, как минимум, 60 минут и их высокой пластичностью (более 15 промежуточных РС), а также достаточной циклической выносливостью резистивных переключений (более 10^5 устойчивых циклов).

Научные положения, выносимые на защиту:

1. Структуры М/НК/Д1/Д2/М [**] показали стабильные биполярные резистивные переключения, пластичность резистивных состояний и удовлетворительную временную стабильность, что обусловлено многофиламентным механизмом формирования проводящих каналов в диэлектрической пленке за счет использования в качестве электрода нанокомпозита металл-диэлектрик составом до порога протекания.

2. В конденсаторных структурах М/НК/М/ситалл, где НК $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$ и $(Co_{50}Fe_{50})_X(SiO_2)_{100-X}$ с концентрацией металлической фазы до порога перколяции при протекании электрического тока происходят необратимые изменения резистивных свойств гетерогенной пленки за счет ее резистивного нагрева, что обусловлено тремя релаксационными процессами:

[**] Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$LiNbO_3$/Cr/Cu/Cr/ситалл (18,9 ат. % < x < 42,1 ат.%), Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$LiNbO_3$/α-Si/Cr/Cu/Cr/ситалл (16,5 ат.% < x < 37,3 ат.%), Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$LiNbO_3$/$Ta_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл (16,5 ат.% < x < 37,3 ат.%), Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл (26,4 ат. % < x < 38,9 ат. %), Cu/$(Co_{50}Fe_{50})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл (18,9 ат. % < x < 33,4 ат. %), Cu/$(Co)_X(SiO_2)_{100-X}$/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл (23,9 ат. % < x < 38,9 ат. %), Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/$Ta_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл (21,4 ат. % < x < 37,3 ат. %) и Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/$Nb_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл (18,9 ат. % < x < 37,3 ат.%)

- уменьшением удельного электрического сопротивления, связанным с выделением на поверхности металлических наногранул атомов металла, внедренных в диэлектрическую матрицу в процессе синтеза НК (в диапазоне удельной рассеиваемой мощности от 0,05 Вт/мм^2 до 1 Вт/мм^2);

- увеличением удельного электрического сопротивления, связанным с уменьшением концентрации локализованных состояний, участвующих в процессе электропереноса в диэлектрической прослойке между металлическими частицами (при удельной рассеиваемой мощности более 1 Вт/мм^2);

- изменением формы частиц от вытянутых в направлении роста пленки к сферическим.

3. В мемристивной структуре Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{33.4}(SiO_2)_{66.6}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл наблюдается ограниченное число обратимых резистивных переключений за счет стабилизации кислородных вакансий в проводящих каналах оксида циркония, стабилизированного иттрием, за счет взаимодействия с атомами бора, диффундирующими в диэлектрик из НК.

4. Наличие прослоек оксида Ta и Nb подавляет процесс стабилизации кислородных вакансий в проводящих каналах оксида циркония, стабилизированного иттрием, в структурах Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/$Ta_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл и Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/$Nb_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл, так как эти оксиды выступают резервуарами кислородных вакансий для оксида циркония.

5. Введение прослоек оксидов Ta и Nb в структуры Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$LiNbO_3$/Cr/Cu/Cr/ситалл и Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл увеличивает величину отношения I(U)/I(U/2), характеризующую степень нелинейности низкоомной ветви ВАХ относительно структур без прослоек за счет увеличения высоты барьера Шоттки.

Достоверность

Основные результаты и выводы диссертации были сделаны на основе анализа экспериментальных данных, полученных на достаточно большом количестве исследованных образцов, различающихся элементным составом и концентрацией металлической фазы, при этом сохранялась воспроизводимость аналогичных свойств при синтезе партий с одинаковыми параметрами получения. В работе применялись проверенные методики напыления, термической обработки, измерения электрофизических параметров и математического анализа полученных результатов, составленные на основе многолетнего опыта коллектива кафедры твердотельной электроники имени В.Г. Колесникова ВГТУ в работе с современными технологиями микро- и наноэлектроники. Кроме того, был проанализирован достаточно большой массив литературных данных. Обсуждение полученных результатов и подготовка работ к публикации проводились при участии доктора физико-математических наук, профессора Ситникова Александра Викторовича, доктора физико-математических

наук, профессора Калинина Юрия Егоровича, доктора физико-математических наук Рылькова Владимира Васильевича, кандидата физико-математических наук Никонова Александра Евгеньевича, кандидата физико-математических наук, доцента Костюченко Александра Викторовича, кандидата физико-математических наук, доцента Бабкиной Ирины Владиславовны. Всё вышеперечисленное подтверждает достоверность полученных результатов и выводов диссертационного исследования.

Апробация работы

Результаты диссертации представлялись на следующих научных выставках и конференциях: Выставка-конкурс научно-технических достижений студентов, аспирантов и молодых ученых в рамках мероприятий «Дни науки ВГТУ» (Воронеж, апрель 2026);66 Научно-техническая конференция профессорско-преподавательского состава, сотрудников, аспирантов и студентов ВГТУ (Воронеж, апрель 2026);Российский форум Микроэлектроника 2025 (Федеральная территория «Сириус», сентябрь 2025);XXVI Международная конференция «Релаксационные явления в твердых телах» (Воронеж, 2025);65 Научно-техническая конференция профессорско-преподавательского состава, сотрудников, аспирантов и студентов ВГТУ (Воронеж, апрель 2025);64 Научно-техническая конференция профессорско-преподавательского состава, сотрудников, аспирантов и студентов ВГТУ (Воронеж, апрель 2024);XVIII Международная научно-практическая конференция «Антропоцентрические науки в образовании» (Воронеж, апрель 2023);63 Научно-техническая конференция профессорско-преподавательского состава, сотрудников, аспирантов и студентов ВГТУ (Воронеж, апрель 2023);XXV Международная конференция «Релаксационные явления в твердых телах» (Воронеж, сентябрь 2022);10 (15) Международный семинар «Физика сегнетоэластиков» (Воронеж, сентябрь 2022).

Публикации

По теме диссертационного исследования опубликовано 37 научных работ, из которых 8 опубликованы в журналах, входящих в перечень ВАК, 7 соответствуют перечню рецензируемых научных изданий, в которых должны быть опубликованы основные научные результаты диссертаций на соискание ученой степени кандидата наук по научной специальности 1.3.8. «Физика конденсированного состояния» (по состоянию на 29.04.2026), 2 индексируются базами данных Web of Science и Scopus. Получено 1 свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ, подана 1 заявка на изобретение.

Связь работы с научными программами и проектами

Диссертационное исследование поддержано стипендией Президента Российской Федерации для аспирантов и адъюнктов, проводящих научные исследования в рамках реализации приоритетов научно-технологического развития Российской Федерации (протокол Совета от 19.06.2024 г. № 13-пр/18).

В основу диссертации положены результаты исследований по следующим научно-исследовательским программам и проектам:

- Нелинейные явления и кинетика реакций в самоорганизующихся материалах и катализируемых ростовых процессах (FZGM-2026-0003, 2026 год);

- Принципы создания новых мемристорных структур конденсаторного типа диэлектрик-нанокомпозит с оптимальным набором эксплуатационных характеристик (Проект РНФ №25-29-00215, 2025-2026);

- Проект РНФ №25-19-90201 совместно с НИЦ «Курчатовский институт» (2026).

Личный вклад автора

Автор принимал участие в разработке технологии и исследовании структуры и электрофизических параметров полученных образцов, обработке и обобщении результатов средствами вычислительной техники, подготовке публикаций. Экспериментальные данные по исследованию структуры, электрофизических, мемристивных и селекторных свойств нанокомпозитных систем, представленных в диссертационном исследовании, получены автором лично.

Объём и структура работы

Диссертация состоит из введения, 5 глав, заключения, списка сокращений и условных обозначений, списка литературы и трех приложений. Основная часть работы изложена на 232 страницах, содержит 159 рисунков и 7 таблиц.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность диссертационной работы, сформулированы цели и задачи исследования, отмечена научная новизна и практическая значимость диссертационного исследования, описаны основные результаты, положения, выносимые на защиту, и личный вклад автора, обосновывается достоверность полученных результатов, приводятся апробация работы, количество публикаций и структура работы.

В первой главе выполнен обзор литературных данных по теме диссертации, представлены краткие сведения об истории открытия мемристивного эффекта и основных принципах реализации резистивного переключения в мемристорах, проанализированы перспективы и актуальные проблемы применения мемристоров в современной электронике, а также отдельно рассмотрены достигнутые результаты в отношении использования мемристоров на основе нанокомпозита $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(LiNbO_3)_{100-X}$ в качестве элементов нейроморфных вычислительных систем.

Во второй главе представлены методы получения исследуемых мемристивных М/НК/Д1/Д2/М и многослойных структур, используемых для изучения процессов, происходящих на интерфейсах НК/Д и Д/М, а также описаны параметры полевого воздействия, применяемые для исследования комплекса основных мемристивных свойств.

Исследуемые в работе тестовые образцы мемристивных структур М/НК/Д1/Д2/М были получены методом ионно-лучевого распыления с ис-

пользованием теневых масок из соответствующих мишеней. Состав мемристивных элементов и параметры осаждения исследуемых в работе образцов представлены в **Приложении А.**

Кроме тестовых мемристивных образцов для исследования структуры функциональных слоев проводилось осаждение отдельных плёнок на монокристаллические подложки Si (100). А для изучения возможного твердотельного взаимодействия между различными материалами синтезировались многослойные структуры (МС) путем послойного осаждения соответствующих плёнок на вращающуюся подложку при одновременном распылении двух мишеней. Топология исследуемых структур представлена на рисунке 1.

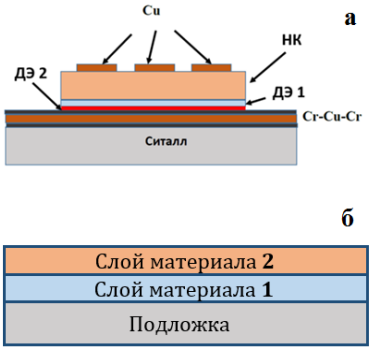


Рисунок 1 – Топология исследуемых мемристивных (а) и многослойных (б) структур

Исследования фазового состава НК проводились методом дифракции рентгеновских лучей на дифрактометре Bruker D2 Phaser ($\lambda_{CuK\alpha1}$ = 1.54 А) с применением программного обеспечения DIFFRAC.EVA3.0 с базой данных ICDD PDF Release 2012.

Мемристивные свойства измерялись с помощью программируемого источника-измерителя Keithley Source Meter 2450 и зондовой станции Cascade Microtech PM5, обеспечивающей подключение к контактам образца путем перемещения зондов с точностью 3 мкм. Связь с устройством для измерения осуществлялась с помощью программы, созданной в среде LabVIEW.

Для корректности анализа мемристивных свойств исследуемых образцов важно было провести аттестацию и изучение структурных превращений, происходящих в процессе термической обработки в ключевых слоях-составляющих мемристивных структур, поэтому **третья глава** посвящена рентгенофазовому анализу полученных структур. В ней рассмотрены структурные превращения, происходящие в процессе термической обработки как отдельных слоёв диэлектрических прослоек $LiNbO_3$, $ZrO_2(Y)$, Si, Ta_2O_5, Nb_2O_5, V_2O_5, Cr_2O_3 и нанокомпозитов $(CoFeB)_x(LiNbO_3)_{100-x}$, $(CoFeB)_x(SiO_2)_{100-x}$, $(CoFe)_x(SiO_2)_{100-x}$, $(Co)_x(SiO_2)_{100-x}$, так и многослойных структур $[CoFeB\text{-}SiO_2/ZrO_2(Y)]_{50}$, $[CoFe\text{-}SiO_2/ZrO_2(Y)]_{50}$, $[Cr/ZrO_2(Y)]_{50}$, $[Nb_2O_5/Cr]_{50}$, $[Ta_2O_5/Cr]_{50}$, $[ZrO_2(Y)/Nb_2O_5]_{50}$, $[ZrO_2(Y)/Ta_2O_5]_{50}$.

Полученные результаты мы для удобства сгруппировали в таблицы. В таблице 1) представлены структурные данные отдельных функциональных пленок, а в таблице 2 - многослойных структур.

Таблица 1 - Структура и свойства функциональных слоев мемристивных структур М/НК/Д1/Д2/М

№ напыления	Состав	Структура в исходном состоянии	Низкотемпературные структурные превращения	Температура кристаллизации	Структура после кристаллизации
2557	$LiNbO_3$ (напыление неподвижно)	Nb_2O_5 + аморфная фаза	300 – 350 ^{0}C растворение кристаллов Nb_2O_5 в аморфной матрице	500 ^{0}C	$LiNbO_3$
2650	$LiNbO_3$ (напыление на вращающуюся подложку)	Nb_2O_5 + аморфная фаза Многослойная	Стабильная структура до кристаллизации	500 ^{0}C	$LiNbO_3$
2598	$(Zr_{92}Y_8)O_2$	Триклинная (размер зерна 19.6 нм)	Увеличение размера зерна до 21.3 нм при отжиге 500 ^{0}C	-	Триклинная ZrO_2(Y)
2639	Si	Аморфная	Стабильна в аморфной фазе до кристаллизации	> 500 ^{0}C	-
2842	Ta_2O_5	Аморфная	Стабильна в аморфной фазе до кристаллизации	700 ^{0}C	Орторомбическая Ta_2O_5
2843	Nb_2O_5 (PP Nb)	Аморфная	Стабильна в аморфной фазе до кристаллизации	600 ^{0}C	Орторомбическая Nb_2O_5 + кристаллиты NbO_2
2932	V_2O_5 (PP V)	Аморфная	Стабильна в аморфной фазе до кристаллизации	300 ^{0}C	Орторомбическая V_2O_5 + моноклинный V_3O_7
2841	Cr_2O_3	Аморфный + кристаллиты ромбоэдрического Cr_2O_3	Плавное уменьшение аморфной фазы и рост кристаллической при температурах от 200 ^{0}C до 400 ^{0}C	400 ^{0}C	Ромбоэдрический Cr_2O_3
2148	$(CoFeB)_x(LiNbO_3)_{100-x}$	Аморфная матрица $LiNbO_3$ + нанокристаллы CoFe	Рост размера кристаллов CoFe с температуры 400 ^{0}C	500 ^{0}C	Соединения $LiNbO_3$, $LiNbO_2$ и NbO_2 и CoFe в кристаллическом виде.
2556	$(CoFeB)_x(SiO_2)_{100-x}$	Аморфная матрица SiO_2 + нанокристаллы CoFe (присутствует малоугловая дифракция от гранул М)	Рост размера кристаллов CoFe с температуры 500 ^{0}C	> 500 ^{0}C	-
2773	$(CoFe)_x(SiO_2)_{100-x}$	Аморфная матрица SiO_2 + нанокристаллы CoFe (малоугловая дифракция от гранул не зафиксирована)	Рост размера кристаллов CoFe с температуры 500 ^{0}C	> 500 ^{0}C	-

2774	$(Co)_x(SiO_2)_{100-x}$	Аморфная матрица SiO_2 + нано-кристаллы Co (малоугловой дифракции от гранул не зафиксировано)	Рост размера кристаллов Co с температуры 500 ^{0}C	> 500 ^{0}C	-

Таблица 2 - Структура и фазовый состав МС в исходном состоянии и после термической обработки

№ партии	Состав	Структура	Структура слоев исходная	Низкотемпературные структурные превращения	Температура начала кристаллизации	Структура после кристаллизации
2935	CoFe-$SiO_2/ZrO_2(Y)$	50 бислоёв толщиной 5.9 нм	SiO_2 – аморфная CoFe – рентгеноаморфная $ZrO_2(Y)$ - рентгеноаморфная	Не зарегистрировано	600 ^{0}C (многослойность разрушается)	SiO_2 – аморфная CoFe – кубическая $ZrO_2(Y)$ – кубическая с а =5.05 Å
2936	CoFeB-$SiO_2/ZrO_2(Y)$	50 бислоёв толщиной 6.8 нм	SiO_2 – аморфная CoFeB – рентгеноаморфная $ZrO_2(Y)$ - рентгеноаморфная	Увеличение размера М гранул	600 ^{0}C (многослойность разрушается)	SiO_2 – аморфная CoFe – кубическая $ZrO_2(Y)$ – кубическая с а =5.1 Å
2937	$Cr/ZrO_2(Y)$	50 бислоёв толщиной 8,3 нм	$ZrO_2(Y)$ – кубический Fm3m Cr- кубическая ОЦК	Рост размеров кристаллитов	-	многослойность не разрушается)
2939	$Nb_2O_5/ZrO_2(Y)$	50 бислоёв толщиной 3,6 нм	Рентгеноаморфны	Формирование соединений $ZrO_2(Y)$, $YNbO_4$, NbO, Nb_2O_5	650^{0}C многослойность не разрушается)	$ZrO_2(Y)$ – тетрагональный $YNbO_4$ - моноклинный NbO – кубический Nb_2O_5 – моноклинный
2940	Nb_2O_5/Cr	50 бислоёв толщиной 7 нм	Cr –ОЦК NbO - рентгеноаморфный	Окисление Cr Восстановление Nb_2O_5 до NbO	650^{0}C многослойность не разрушается)	NbO – кубический Cr_2O_3 – гексагональный
2941	$Ta_2O_5/ZrO_2(Y)$	50 бислоёв толщиной 3,6 нм	Рентгеноаморфны	Формирование соединений $ZrO_2(Y)$, Ta_2O_5	600^{0}C многослойность не разрушается)	$ZrO_2(Y)$ – кубический Ta_2O_5 - моноклинный
2942	Ta_2O_5/Cr	50 бислоёв толщиной 7.8 нм	Cr –ОЦК Ta_2O_5 - рентгеноаморфный	Окисление Cr Восстановление Ta_2O_5 — до TaO_2 и металлического Ta	600^{0}C многослойность не разрушается)	Cr- ОЦК; Cr_2O_3 – гексагональный ; $TaCr_2$ – гексагональный; Ta – ОЦК; Ta_2O_5 - орторомбический

В **<u>четвертой главе</u>** представлено исследование влияния электрического поля на электротранспортные свойства НК $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$ и $(Co_{50}Fe_{50})_x(SiO_2)_{100-x}$, а также влияния термической обработки на электротранспортные свойства НК $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(LiNbO_3)_{100-x}$.

Зависимости относительного изменения удельного электрического сопротивления пленок НК от удельной мощности (Р), рассеянной на исследуемой структуре при напряжении измерения 0,1 В (рисунок 2) показали, что при удельной рассеиваемой мощности до 0.05 Вт/мм^2 изменения сопротивления НК не фиксируются. В диапазоне от 0.05 Вт/мм^2 до 1 Вт/мм^2 наблюдается снижение сопротивления, а когда Р больше 1 Вт/мм^2, сопротивление НК возрастает. Однако имеется существенное различие: так если у НК $(CoFeB)_x(SiO_2)_{100-x}$ (рисунок 2 а) более интенсивное понижение сопротивления в области II наблюдается у составов с увеличением содержания металлической фазы, то в НК $(CoFe)_x(SiO_2)_{100-x}$ (рисунок 2 б) - с уменьшением х.

Для объяснения данных зависимостей было предложено, что при большом токе измерений, когда приведенная мощность превышает 0,1 Вт/мм^2, пленки подвергаются нагреву, приводящему к необратимым резистивным изменениям гетерогенной структуры образцов. Для композита $(CoFeB)_x(SiO_2)_{100-x}$ в области приведенной мощности от 0,1 Вт/мм^2 до 1 Вт/мм^2 при высокой концентрации металлической фазы от 31.2 ат. % до 38.9 ат. %.

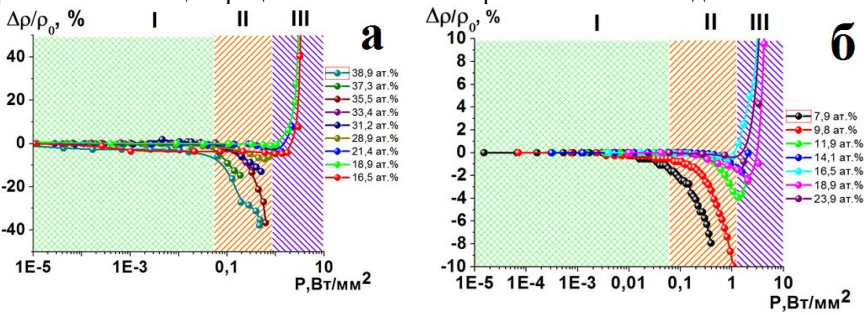


Рисунок 2 - Зависимость относительного изменения удельного электрического сопротивления пленок НК $(CoFeB)_x(SiO_2)_{100-x}$ (а) и $(CoFe)_x(SiO_2)_{100-x}$ (б), измеренного при напряжении 0,1В, от удельной мощности, рассеянной на исследуемой структуре

удалось выявить область понижения ρ (рисунок 2а, область II), связанную с процессом увеличения размера гранул за счет денуклиации атомов металла, внедренных в диэлектрическую фазу на поверхности частиц. Наша оценка (**<u>Приложение Б</u>**) изменения диаметра частиц композита $(CoFeB)_{20}(SiO_2)_{80}$ при концентрации растворенных частиц Co+Fe порядка 10^{22} см$^{-3}$ показала рост размера гранулы с 3 нм до 3,6 нм. При этом расстояние между частицами уменьшилось с 1,7 нм до 1,1 нм.

При мощности более 1 Вт/мм^2 (рисунок 2а, область III) величина ρ увеличивается за счет уменьшения концентрации дефектных состояний в диэлектрической прослойке между металлическими частицами, которые выступают

в качестве локализованных состояний, участвующих в процессе электропереноса. Модельное представление данных процессов приведено на рисунке 3.

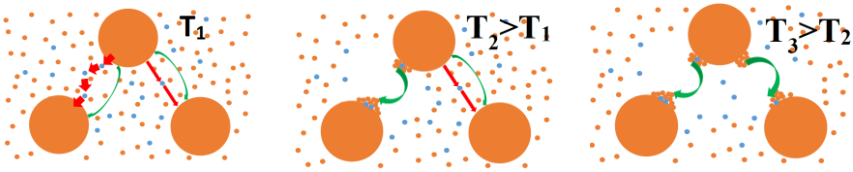


Рисунок 3 - Модельные представления относительного изменения вкладов в проводимость от туннелирования электронов из гранулы в гранулу (зеленые стрелки) и через локализованные состояния (красные стрелки) при термическом воздействии на пленку нанокомпозита

В НК $(CoFe)_x(SiO_2)_{100-x}$ кроме вышеописанных механизмов обнаружен дополнительный вклад в изменение электрического сопротивления, связанный с изменением формы гранул от вытянутых в направлении роста пленки к более сферическим, что приводит к увеличению расстояния между проводящими частицами и увеличению значений ρ. Это привело к смещению концентрации металлической фазы НК, при которой наблюдается уменьшение величины сопротивления, в область малых значений x (от 7.9 ат. % до 11.9 ат.%) (рисунок 2б, область II) по причине более сферической конфигурации наночастиц в данном концентрационном диапазоне в исходном состоянии. Данное предположение подтверждается результатами структурного анализа пленок НК $(CoFe)_X(SiO_2)_{100-X}$, в которых упорядочение гранулированной структуры наблюдается только при содержании металлической фазы менее 10 ат.%. При больших значениях x упорядоченность расположения гранулированной структуры НК в исходном состоянии отсутствует. Это коррелирует с литературными данными о том, что добавление в металлический сплав атомов B и Zr способствует образованию зародышей диэлектрической фазы на поверхности металлических гранул и росту изотропной структуры композита. Вместе с тем, зачатки гранулированной структуры в данных НК начинают проявляться при термической обработке (рисунок 4).

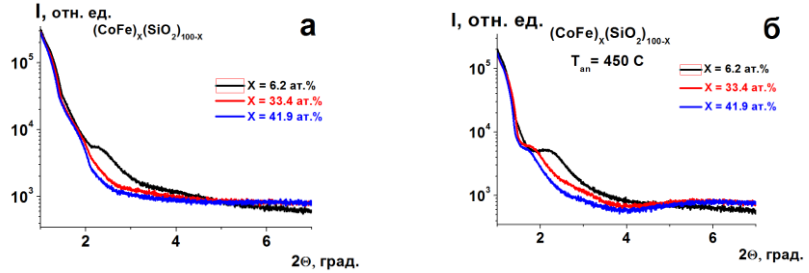


Рисунок 4 - Малоугловые дифрактограммы от пленок НК $(CoFeB)_x(SiO_2)_{100-x}$ и $(CoFe)_x(SiO_2)_{100-x}$ в исходном состоянии (а) и после термической обработки (б)

Исходя из данных результатов, можно предположить, что вытянутые в направлении роста металлические гранулы препятствуют формированию квазиупорядоченной структуры НК с одной стороны и формируют не вполне равновесную структуру в плане минимизации поверхностной энергии гетерогенной системы - с другой.

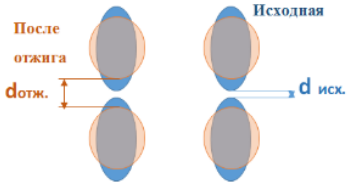


Рисунок 5- Модельное представление изменения формы гранул в структуре нанокомпозита $(CoFe)_X(SiO_2)_{100-X}$ в процессе термической обработки

Подобная релаксация приводит к увеличению расстояния между металлическими гранулами, которое не может быть скомпенсировано некоторым количеством денуклиированных атомов металла, поступившим из диэлектрической фазы НК, а, следовательно, данный процесс будет приводить к увеличению электрического сопротивления образцов. Модельное представление процесса изменения формы гранул можно изобразить так, как показано на рисунке 5.

В **пятой главе** представлено исследование комплекса основных мемристивных свойств (отношения R_{off}/R_{on}, временной стабильности и пластичности индуцируемых резистивных состояний, количества циклов устойчивого резистивного переключения) структур $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/LiNbO_3/Cr/Cu/Cr$, $Cu/(CoFeB)_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr$, $Cu/(CoFe)_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr$, $Cu/(Co)_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr$, а также добавления прослоек a-Si и Ta_2O_5 в $(CoFeB)_X(SiO_2)_{100-X}/LiNbO_3$ и Ta_2O_5 и Nb_2O_5 в $(CoFeB)_x(SiO_2)_{100-x}/ZrO_2(Y)$ на параметр нелинейности ВАХ данных структур, определяемый как отношение тока I(U) при заданном напряжении U к току I(U/2) при половинном напряжении, то есть I(U)/I(U/2). Полученные численные значения параметров, характеризующие основные мемристивные и селективные свойства образцов при x=34 ат.% (таблица 3), приведены в **Приложении В.** Данное значение концентрации металлической фазы выбрано в качестве опорного для сравнения, так как при нём в большинстве образцов наблюдается оптимальный характер ВАХ.

Было выявлено, что во всех исследуемых структурах наблюдаются стабильные биполярные резистивные переключения, удовлетворительная временная стабильность и пластичность резистивных состояний (пример представлен на рис.6), что обусловлено многофиламентным механизмом формирования проводящих каналов в диэлектрической пленке за счет использования в качестве электрода нанокомпозита металл-диэлектрик составом до порога протекания. Вместе с тем, диапазон концентрации металлической фазы, при котором наблюдается биполярное резистивное переключение уникален для каждой отдельной структуры.

Таблица 3 - Значения основных мемристивных и селекторных свойств исследованных образцов с x=34 ат.%

Номер напы-ления	**Состав**	**U_{set}, В**	**U_{reset}, В**	**Значе-ние R_{off}/R_{on}**	**Временная стабильность РС**	**Пластичность РС**	**Количество устойчивых циклов РП**	**I(U)/I(U/2)**
2453	$Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/LiNbO_3/Cr/Cu/Cr$	5	-3,5	234	Деградирует	Более 14 РС	Более 10^4	22,1 (при U=3,9 В)
	$Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/LiNbO_3/Cr/Cu/Cr$ (*термическая обработка 300 °С*)	5	-4,5	60	Устойчивая	Более 14 РС	Более 10^4	-
2600	$Cu/(CoFeB)_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr$	4,1	-3,7	18	Устойчивая	Более 16 РС	≈2500	28 (при U=3 В)
	$Cu/(CoFeB)_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr$ (*термическая обработка 300 °С*)	3,9	-3,8	81,7	Устойчивая	Более 18 РС	≈2000	-
2615	$Cu/(CoFe)_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr$	4,3	-3,4	92	Устойчивая	Более 14 РС	Более 10^4	-
2618	$Cu/(Co)_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr$	3,6	-3	11,7	Устойчивая	Более 10 РС	Более 10^4	-
2565	$Cu/(CoFeB)_X(SiO_2)_{100-X}/LiNbO_3$/a-Si/Cr/Cu/Cr	5,1	-5,5	171	Устойчивая	Более 14 РС	≈2000	10,6 (при U=1,4 В)
2561	$Cu/(CoFeB)_X(SiO_2)_{100-X}/LiNbO_3/Ta_2O_5/Cr/Cu/Cr$	6,6	-5,6	17,9	Устойчивая	Более 10 РС	Более 10^4	48,1 (при U=3,6 В)
2604	$Cu/(CoFeB)x(SiO_2)_{100-x}/ZrO_2(Y)/Ta_2O_5/Cr/Cu/Cr$	5,8	-5	145	Устойчивая	Более 15 РС	Более 10^4	73,6 (при U=3,4 В)
2610	$Cu/(CoFeB)x(SiO_2)_{100-x}/ZrO_2(Y)/Nb_2O_5/Cr/Cu/Cr$	7,6	-7,6	126,9	Устойчивая	Более 16 РС	≈8000	57,5 (при U=3,6 В)

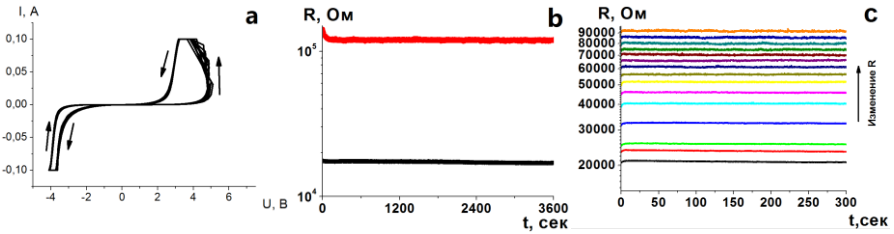


Рисунок 6 - ВАХ (а), временная зависимость (б) и пластичность (с) индуцированных резистивных состояний в структурах Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{33,4}(SiO_2)_{66,6}$/$ZrO_2$(Y)/$Ta_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл

В структуре Cu/$(CoFeB)_{35,5}(SiO_2)_{64,5}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл обнаружено ограниченное число обратимых резистивных переключений, выраженное в деградации амплитуды – приближении значения сопротивления R_{off} к R_{on} по мере роста количества переключений. При этом термическая обработка данных структур способствует ещё большему снижению данного параметра (рисунок 7).

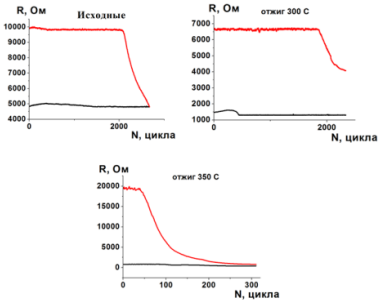


Рисунок 7 - Переключения резистивных состояний в мемристорных структурах Cu/$(CoFeB)_{35,5}(SiO_2)_{64,5}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл в исходном состоянии и после термообработки в течение 60 минут при различных температурах

Исходя из данных наблюдений нами было сделано предположение о деструктивном влиянии атомов, заключающемся в их диффузии в Д из НК и стабилизации кислородных вакансий в проводящих каналах, которое подтвердилось при исследовании количества циклов устойчивого резистивного переключения в структурах, из состава которых был исключен бор - Cu/$(CoFe)_X(SiO_2)_{100-X}$/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr и Cu/$(Co)_X(SiO_2)_{100-X}$/ZrO_2(Y) /Cr/Cu/Cr (рисунок 8).

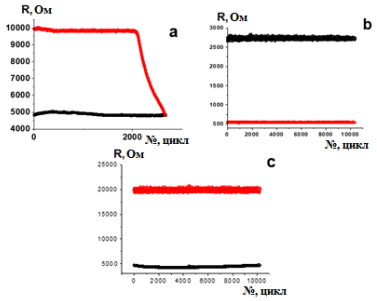


Рисунок 8 - Переключения резистивных состояний в мемристорных структурах:
a-Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{33,4}(SiO_2)_{66,6}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/,
b - Cu/$(Co_{50}Fe_{50})_{33,4}(SiO_2)_{66,6}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/
c - Cu/$(Co)_{33,4}(SiO_2)_{66,6}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл

Интересным стало наблюдение, что введение дополнительных диэлектрических прослоек Ta_2O_5 и Nb_2O_5 в структуру $(CoFeB)x(SiO_2)_{100-x}$/ZrO_2(Y) также существенно улучшает данный параметр (рисунок 9), исходя из чего мы сделали предположение, что данные прослойки выступают в

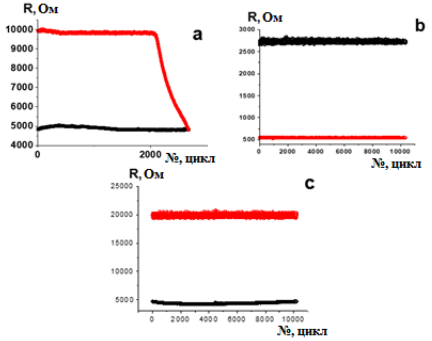


Рисунок 9 - Переключения резистивных состояний в мемристорных структурах:
a-Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{33,4}(SiO_2)_{66,6}$/$ZrO_2(Y)$/Cr/Cu/Cr/ситалл,
b - Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{33,4}(SiO_2)_{66,6}$/ $ZrO_2(Y)/Ta_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл и
c - Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{33,4}(SiO_2)_{66,6}/ZrO_2(Y)/Nb_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл

роли резервуаров кислородных вакансий, компенсирующих негативное воздействие атомов бора на кислородные вакансии в филаментах.

Что касается исследования влияния введения дополнительных диэлектрических прослоек на параметр нелинейности ВАХ мемристивных структур Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}/LiNbO_3$/Cr/Cu/Cr/ситалл, оно показало, что прослойка оксида тантала увеличивает значения отношения I(U)/I(U/2) в LRS, тогда как a-Si, напротив, способствует понижению этого параметра относительно структуры, не имеющей прослоек (рисунок 10).

При этом стоит отметить, что абсолютные значения I(U)/I(U/2) от U достигают 50 единиц для структуры Cu/$(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}$/$LiNbO_3/Ta_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл при напряжении 3.6 В, что является достаточно примечательным результатом, учитывая, что не проводилась оптимизация всего возможного комплекса технологических параметров получения образцов для достижения максимальных значений данной характеристики.

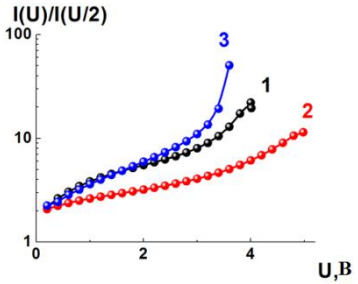


Рисунок 10 - Зависимости отношения I(U)/I(U/2) от напряжения для мемристивных структур:
1 - Cu/$(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}/LiNbO_3$/Cr/Cu/Cr,
2 - Cu/$(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}/LiNbO_3$/Si/Cr/Cu/Cr/ситалл и
3 - Cu/$(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}/LiNbO_3/Ta_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл

В общем случае нелинейность ВАХ в исследуемых структурах связана с отсутствием сплошных проводящих каналов между металлическими электродами в низкоомном резистивном состоянии за счет режима многофиламентного резистивного переключения, реализуемого из-за использования нанокомпозита металл-диэлектрик в качестве контактного слоя. Однако выявлено, что лимитирующие механизмы электропереноса в исследуемых структурах достаточно сильно различаютс

Так, было выявлено, что для структуры Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}/LiNbO_3$/Cr/Cu/Cr/ситалл в LRS при низких токах протекания реализуется

эмиссия Шоттки (рисунок 11 a), а при высоких значениях тока проводимость осуществляется в соответствии с механизмом Пула – Френкеля (рисунок 11 b). В структуре с прослойкой аморфного кремния ($Cu/(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}/LiNbO_3/Si/Cr/Cu/Cr$/ситалл) вследствие формирования прослойки SiO_2 между слоями $LiNbO_3$ и Si, определяющим механизмом электропереноса является механизм термически облегченного туннелирования через диэлектрический барьер практически во всем диапазоне напряжений вплоть до напряжения переключения структуры в высокоомное состояние (рисунок 11c). Наличие прослойки Ta_2O_5 в структуре $Cu/(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}/LiNbO_3/Cr/Cu/Cr$/ситалл, с одной стороны, приводит к доминированию эмиссии Шоттки из металлической фазы НК контакта при низких значениях тока по причине высоких токов утечки через дефекты прослойки Ta_2O_5, а, с другой стороны, при высоких значениях тока наличие туннельного барьера и насыщение токов утечки приводит к смене механизма электропереноса через данную структуру на механизм термически облегченного туннелирования через прослойку оксида тантала (рисунок 11d).

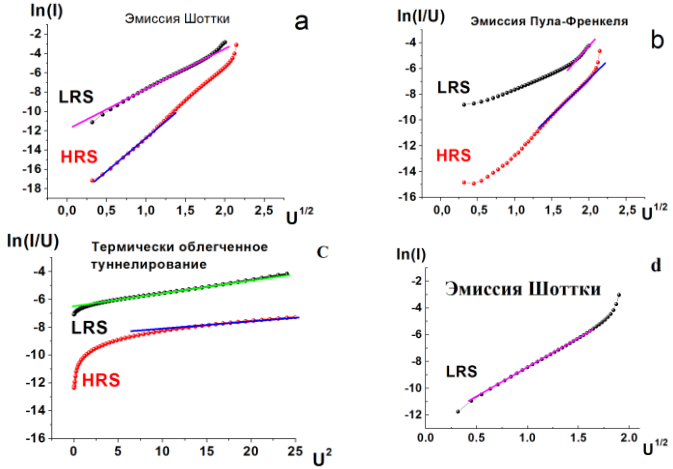


Рисунок 11 – Низкоомные (LRS) и высокоомные (HRS) ветви ВАХ структур $Cu/(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}/LiNbO_3/Cr/Cu/Cr$/ситалл (a,b), $Cu/(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}/LiNbO_3/Si/Cr/Cu/Cr$/ситалл (c) и $Cu/(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}/LiNbO_3/Ta_2O_5/Cr/Cu/Cr$/ситалл (d) в координатах, соответствующие различным механизмам проводимости

Поскольку мы выявили негативное влияние прослойки a-Si на параметр I(U)/I(U/2), при дальнейшем исследовании влияния дополнительных диэлектрических прослоек на нелинейность ВАХ в структурах $Cu/(CoFeB)_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr$ мы решили вместо a-Si использовать Nb_2O_5, который согласно литературным данным, близок по своим свойствам оксиду тантала, показавшему достаточно примечательный результат.

Исследования влияния прослоек оксидов Nb и Ta на мемристивные свойства структуры $Cu/(CoFeB)_{33,4}(SiO_2)_{66,6}/ZrO_2(Y)$ /Cr/Cu /Cr/ситалл показали, что данные функциональные слои существенно увеличивают нелинейность ВАХ в области низкоомного резистивного состояния образцов. Так, для структуры $Cu/(CoFeB)_{33,4}(SiO_2)_{66,6}/ZrO_2(Y)/Ta_2O_5$ /Cr/Cu/Cr/ситалл и $Cu/(CoFeB)_{33,4}(SiO_2)_{66,6}/ZrO_2(Y)/Nb_2O_5$ /Cr/Cu/Cr/ситалл отношение I(U)/I(U/2) достигает приблизительно 60 и 80 единиц соответственно при напряжении считывания около 3,5 В (рисунок 12).

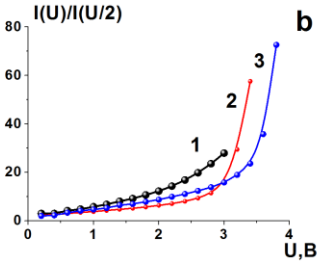


Рисунок 12- Зависимости отношения I(U)/I(U/2) от напряжения для мемристивных структур: 1 - $Cu/(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}/ZrO_2(Y)$/Cr/Cu/Cr/ ситалл, 2 - $Cu/(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}/ZrO_2(Y)/\mathbf{Ta_2O_5}$ /Cr/Cu/Cr/ситалл , 3 - $Cu/(CoFeB)_{33.4}(SiO_2)_{66.6}/ZrO_2(Y)$ /$\mathbf{Nb_2O_5}$/Cr/Cu/Cr/ситалл

Анализ доминирующих механизмов проводимости в данных структурах показал, что в низкоомной ветви ВАХ данных трёх структур основным является термоактивированная эмиссия электронов из металлического контакта в диэлектрик над потенциальным барьером между ними (эмиссия Шоттки) – так как наблюдается спрямление кривых в координатах $\ln(I) - U^{1/2}$. Однако при низком токе ограничения при формовке ($I_{max} < 0.01$ А) в случае структуры с прослойкой Ta_2O_5 реализуется электроперенос за счет надбарьерного перехода электронов между ловушками за счет их термической активации в зоне проводимости (эффекта Пула – Френкеля), о чём свидетельствует спрямление кривых в координатах $\ln(I/U) - U^{1/2}$ (рисунок 13).

Таким образом, представленный в главе анализ показал, что по совокупности представленных характеристик наибольший практический интерес в качестве мемристивного элемента со встроенным селектором представляет структура $Cu/(CoFeB)_{33,4}(SiO_2)_{66,6}/ZrO_2(Y)/Ta_2O_5$/Cr/Cu/Cr/ситалл, обладающая как примечательным уровнем мемристивных характеристик, а именно отношением R_{on}/R_{off} ≈145, устойчивой временной стабильностью резистивных состояний в течение как минимум 60 минут и их высокой пластичностью (более 15 промежуточных РС), а также достаточной циклической выносливостью резистивных переключений (более 10^5 устойчивых циклов), так и высоким уровнем нелинейности ВАХ – 57,5 (при U=3,4 В и предшествующем токе формовки 0.02 А).

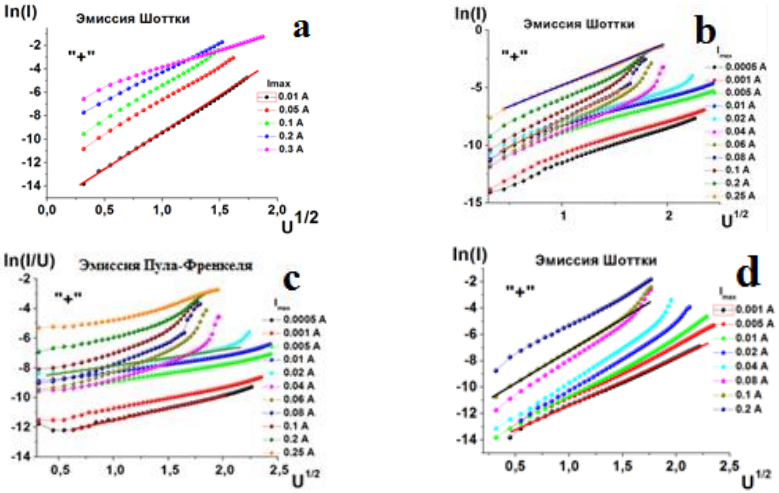


Рисунок 13 – Низкоомные (LRS) и высокоомные (HRS) ветви ВАХ структур $Cu/(CoFeB)_{33,4}(SiO_2)_{66,6}/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr$/ситалл (a), $Cu/(CoFeB)_{33,4}(SiO_2)_{66,6}/ZrO_2(Y)/Ta_2O_5/Cr/Cu/Cr$/ситалл (b,c) и $Cu/(CoFeB)_{33,4}(SiO_2)_{66,6}/ZrO_2(Y)/Nb_2O_5/Cr/Cu/Cr$/ситалл (d) в координатах, соответствующих различным механизмам проводимости

В **заключении** приведены основные результаты работы.

1. Разработаны технологические приемы получения лабораторных мемри-стивных структур М/НК/Д1/М и М/НК/Д1/Д2/М, где НК – $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$, $(Co_{50}Fe_{50})_X(SiO_2)_{100-X}$, $(Co)_X(SiO_2)_{100-X}$, Д1- $LiNbO_3$, $ZrO_2(Y)$, Д2 - α-Si, Ta_2O_5, Nb_2O_5;

2. В структуре $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/LiNbO_3/Cr/Cu/Cr$/ситалл обнаружено биполярное резистивное переключение в элементах с концентрацией металлической фазы от 18,9 ат. % до 42,1 ат.%, циклическая выносливость более 10^5 устойчивых циклов РП, возможность индуцирования более 14 резистивных состояний в диапазоне между R_{off} и R_{on} с некоторой деградацией стабильности при приближении к значению высокоомного состояния, максимальное значение R_{off}/R_{on} 875 и параметр нелинейности I(U)/I(U/2) 22 (при U=3,9 В);

3. Термическая обработка в течение 1 часа в вакууме $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/LiNbO_3/Cr/Cu/Cr$/ситалл при температуре до 350 ^{0}C улучшает стабильность параметров $R_{on}(t)$, $R_{off}(t)$ и временную стабильность индуцированных сопротивлений в промежутке между значениями R_{on} и R_{off}, что предположительно связано с увеличением степени гомогенизации аморфной фазы Д за счет уменьшения размера и концентрации нанообластей Nb_2O_5, распределенных в аморфной матрице $LiNbO_3$. При этом отжиги при температурах выше 350 ^{0}C приводят к значительному увеличению напряжений РП.

Данный процесс определяется значительным увеличением удельного электрического сопротивления НК при отжигах, что можно объяснить уменьшением концентрации локализованных состояний в диэлектрической матрице НК, участвующих в процессе электропереноса при термическом воздействии от 400 ^{0}C до 500 ^{0}C;

4. В структуре Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_{33.4}(SiO_2)_{76.6}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл обнаружено биполярное резистивное переключение в элементах с концентрацией металлической фазы от 26,4 ат. % до 38,9 ат. %, устойчивый характер временных стабильностей сопротивления, возможность индуцирования более 16 резистивных состояний в диапазоне между R_{off} и R_{on}, максимальное значение R_{off}/R_{on} 18 и параметр нелинейности I(U)/I(U/2) равный 28 (при U=3 В). Однако циклическая выносливость данных структур не превышает ≈2500 обратимых циклов РП. При этом термическая обработка до 350 ^{0}C не способствует улучшению данного параметра;

5. В структуре Cu/$(Co_{50}Fe_{50})_X(SiO_2)_{100-X}$/$ZrO_2$(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл обнаружено биполярное резистивное переключение в элементах с концентрацией металлической фазы от 18,9 ат. % до 33,4 ат. %, устойчивый характер временных стабильностей сопротивления, возможность индуцирования более 14 резистивных состояний в диапазоне между R_{off} и R_{on}, максимальное значение R_{off}/R_{on} 92 и циклическая выносливость более 10^5 устойчивых циклов РП;

6. В структуре Cu/$(Co)_X(SiO_2)_{100-X}$/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr/ситалл обнаружено биполярное резистивное переключение в элементах с концентрацией металлической фазы от 23,9 ат. % до 38,9 ат. %, устойчивый характер временных стабильностей сопротивления, возможность индуцирования более 10 резистивных состояний в диапазоне между R_{off} и R_{on}, максимальное значение R_{off}/R_{on} 11,7 и циклическая выносливость более 10^5 устойчивых циклов РП;

7. Выявлен эффект стабилизации кислородных вакансий в проводящих каналах в функциональном слоя ZrO_2(Y) за счет взаимодействия с атомами бора, диффундирующими в диэлектрик из НК;

8. В структуре Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$LiNbO_3$/α-Si/Cr/Cu/Cr/ ситалл обнаружено биполярное резистивное переключение в элементах с концентрацией металлической фазы от 16,5 ат.% до 37,3 ат.%, устойчивый характер временных стабильностей сопротивления, возможность индуцирования более 14 резистивных состояний в диапазоне между R_{off} и R_{on}, максимальное значение R_{off}/R_{on} 171 и параметр нелинейности I(U)/I(U/2) равный 10,6 (при U=1,4 В). Однако циклическая выносливость данных структур не превышает ≈2000 обратимых РП.

9. В структуре Cu/$(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}$/$LiNbO_3$/$Ta_2O_5$/ Cr/Cu/Cr/ ситалл обнаружено биполярное резистивное переключение в элементах с концентрацией металлической фазы от 16,5 ат.% до 37,3 ат.%, устойчивый характер временных стабильностей сопротивления, возможность индуцирования более 10 резистивных состояний в диапазоне между R_{off} и R_{on}, максимальное

значение R_{off}/R_{on} 171 и параметр нелинейности I(U)/I(U/2) равный 18,1 (при U=3 В) и циклическая выносливость более 10^5 устойчивых циклов РП;

10. В структуре $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Ta_2O_5/Cr/Cu/Cr/$ ситалл обнаружено биполярное резистивное переключение в элементах с концентрацией металлической фазы от 21,4 ат. % до 37,3 ат. %, устойчивый характер временных стабильностей сопротивления, возможность индуцирования более 15 резистивных состояний в диапазоне между R_{off} и R_{on}, максимальное значение R_{off}/R_{on} 145 и параметр нелинейности I(U)/I(U/2) равный 57,5 (при U=3 В) и циклическая выносливость более 10^5 устойчивых циклов РП;

11. В структуре $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Nb_2O_5/Cr/Cu/Cr/$ ситалл обнаружено биполярное резистивное переключение в элементах с концентрацией металлической фазы от 18,9 ат. % до 37,3 ат.%, устойчивый характер временных стабильностей сопротивления, возможность индуцирования более 16 резистивных состояний в диапазоне между R_{off} и R_{on}, максимальное значение R_{off}/R_{on} 126,9 и параметр нелинейности I(U)/I(U/2) равный 27 (при U=2,7 В) и циклическая выносливость 8000 устойчивых циклов РП;

12. Выявлено, что прослойки оксида Ta и Nb подавляют процесс стабилизации кислородных вакансий в проводящих каналах в функциональном слое $ZrO_2(Y)$ в структурах $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Ta_2O_5$ $/Cr/Cu/Cr$/ситалл и $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Nb_2O_5/Cr/Cu/Cr/$ ситалл, так как эти оксиды выступают резервуарами кислородных вакансий для оксида циркония.

13. Выявлено, что введение прослоек оксидов Ta и Nb в структуры $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/LiNbO_3/Ta_2O_5/Cr/Cu/Cr/$ситалл, $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Ta_2O_5/Cr/Cu/Cr/$ситалл и $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_X(SiO_2)_{100-X}/ZrO_2(Y)/Nb_2O_5/Cr/Cu/Cr/$ситалл увеличивает величину отношения I(U)/I(U/2), характеризующую степень нелинейности низкоомной ветви ВАХ, относительно структур без прослоек за счет увеличения высоты барьера Шоттки.

Основные результаты диссертации опубликованы в следующих работах:

Публикации в изданиях, рекомендованных ВАК РФ

1. Sitnikov, A. V. The influence of a-Si and Ta_2O_5 interfaces on a current–voltage characteristics nonlinearity in a capacitor-type memristive structures $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}/LiNbO_3/Cr/Cu/Cr$ / A. V. Sitnikov, Yu. E. Kalinin, I. V. Babkina, A. E. Nikonov, **A. R. Shakurov**, M. N. Kopytin // Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. — 2026. — Vol. 90. — p.1348-1354.

2. Ситников, А. В. Влияние термической обработки на мемристивные свойства слоистых структур $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}/Zr_{92}Y_8O_2/Cr/Cu/Cr$ / А. В. Ситников, Ю. Е. Калинин, И. В. Бабкина, А. Е. Никонов, Е. А. Осипов, **А. Р. Шакуров**, В. В. Рыльков //ФТТ — 2026. — Вып. 3. — С. 416–421.

3. Ситников, А. В. Влияние электрического поля на электротранспортные свойства нанокомпозитов $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$ / А. В. Ситников, Ю. Е. Калинин, И. В. Бабкина, А. Е. Никонов, Д. С. Погребной, **А. Р. Шакуров** // ЖТФ. — 2025. — Т. 95. — № 1. — С. 107–113.

4. Ситников, А. В. Влияние нанокомпозитов на мемристивные свойства конденсаторных структур $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}/LiNbO_3/Cr/Cu/Cr$ / А. В. Ситников, Ю. Е. Калинин,

И. В. Бабкина, А. Е. Никонов, Д. С. Погребной, **А. Р. Шакуров** // ЖТФ. — 2025. — Т. 95. — № 11. — С. 2169–2175.

5. Бабкина, И. В. Мемристивные свойства конденсаторных структур $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}/ZrO_2(Y)/Cr/Cu/Cr$ / И. В. Бабкина, А. В. Ситников, Ю. Е. Калинин, А. Е. Никонов, А. В. Ампилогов, **А. Р. Шакуров**, В. В. Рыльков // ФТТ. — 2025. — Т. 67. — № 5. — С. 817–822.

6. Ситников, А. В. Влияние термической обработки на мемристивные свойства конденсаторных структур $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}/LiNbO_3/Cr/Cu/Cr$ / А. В. Ситников, Ю. Е. Калинин, И. В. Бабкина, А. Е. Никонов, **А. Р. Шакуров**, М. Н. Копытин // ФТТ. — 2024. — Т. 66. — № 10. — С. 1713–1720.

7. Sitnikov, A. V. Formation of $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(LiNbO_3)_{100-x}$ composite film on a metallic substrate / A. V. Sitnikov, I. V. Babkina, Yu. E. Kalinin, A. E. Nikonov, M. N. Kopytin, **A. R. Shakurov**, O. I. Remizova, L. I. Yanchenko // Technical Physics. — 2024. — Vol. 69. — №. 2. — P. 399–403.

8. Sitnikov, A. V. Influence of Li ions on memristor properties of capacitor structures based on nanocomposites $(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(LiNbO_3)_{100-x}$ / A. V. Sitnikov, Yu. E. Kalinin, I. V. Babkina, A. E. Nikonov, M. N. Kopytin, L. I. Yanchenko, **A. R. Shakurov** // Technical Physics. — 2024. — Vol. 69. — №. 7. — P. 2133–2140.

Объекты интеллектуальной собственности

9. Лопатин, А. Ю. Скрипт Origin Pro для автоматизации построения и обработки массива вольт-амперных характеристик : свидетельство о регистрации программы для ЭВМ № RU 2026619206 / А. Ю. Лопатин, А. В. Ситников, А. Е. Никонов, **А. Р. Шакуров** ; дата регистрации: 01.04.2026 ; заявка № 2026615067 от 27.02.2026.

10. Шакуров, А. Р. Способ получения мемристивных элементов с усиленной внутренней нелинейностью на основе нанокомпозита металл-нестехиометрический оксид : заявка на изобретение № 2026116964 / **А. Р. Шакуров**, А. В. Ситников, А. Е. Никонов, Ю. Е. Калинин, В. В. Рыльков, А. С. Самофалова, А. Ю. Лопатин ; дата подачи 02.06.2026.

Статьи и материалы международных и всероссийских конференций

11. Ситников, А. В. Влияние прослоек a-Si и Ta_2O_5 на степень нелинейности ВАХ в мемристивных структурах конденсаторного типа $Cu/(Co_{40}Fe_{40}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}/LiNbO_3/Cr/Cu/Cr$ /А. В. Ситников, Ю. Е. Калинин, И. В. Бабкина, А. Е. Никонов, **А. Р. Шакуров**, М. Н. Копытин // Релаксационные явления в твёрдых телах : материалы XXVI Международной конференции. — Воронеж, 2025. — С. 126–127.

12. Бабкина, И. В. Влияние бора на циклическую выносливость мемристивных структур нанокомпозит $CoFeB-SiO_2/ZrO_2(Y)$ / И. В. Бабкина, **А. Р. Шакуров**, А. Е. Никонов, А. В. Ампилогов, А. В. Ситников // Релаксационные явления в твёрдых телах : материалы XXVI Международной конференции. — Воронеж, 2025. — С. 128–129.

13. Lopatin, A. Yu. Studies of the thermovoltaic effect in semiconductors / A. Yu. Lopatin, Yu. E. Kalinin, A. R. Shakurov // Антропоцентрические науки в образовании : сборник научных статей XVIII Международной научно-практической конференции / редкол.: Э. П. Комарова (отв. ред.) [и др.]. — Воронеж, 2023. — С. 290–292.

14. Shakurov, A. R. Memristive properties of metal/composite/metal structures and metal/composite/dielectric/metal structures / **A. R. Shakurov**, A. V. Sitnikov, A. Yu. Lopatin, D. S. Mordasov // Антропоцентрические науки в образовании : сборник научных статей XVIII Международной научно-практической конференции / редкол.: Э. П. Комарова (отв. ред.) [и др.]. — Воронеж, 2023. — С. 319–321.

Подписано в печать _30. 09. 2026
Формат А5. Бумага писчая.
Усл. печ. л. 1,0. Тираж 100 экз. Заказ № _____.
ФГБОУ ВО «Воронежский государственный технический университет»
Отдел оперативной полиграфии издательства ВГТУ. 394006, Воронеж, ул. 20-летия Октября, 84