

РЕНТГЕН-ДИФРАКЦИОННЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНОК $\text{YB}_2\text{C}_3\text{O}_{7.8}$ В МЕМРИСТИВНЫХ СТРУКТУРАХ

Н.А. Тулина¹, И.М. Шмытько¹, А.Н. Россоленко¹, А.А. Иванов²

¹Федеральное Государственное Бюджетное Учреждение Науки «Институт Физики Твердого
Тела» РАН,

ул. Академика Осипьяна, 2, Черноголовка, Московская Область, 142432 Россия,

E-Mail: anr@issp.ac.ru;

²Национальный Исследовательский Ядерный Университет "МИФИ", Москва;

X-RAY DIFFRACTION STUDIES OF EPITAXIAL $\text{YB}_2\text{C}_3\text{O}_{7.8}$ FILMS IN MEMRISTIVE STRUCTURES

N.A. Tulina¹, I.M. Shmytko¹, A.N. Rossolenko¹, A.A. Ivanov²

¹Federal State Budget Institution of Science "Institute of Solid State Physics", RAS,

2 Akademika Ossipyana str., Chernogolovka, the Moscow Region, 142432 Russia,

E-Mail: anr@issp.ac.ru;

²National Research Nuclear University "MEPhI", Moscow, Russia;

Исследованы эффекты кислородного легирования на резистивные свойства планарных мемристивных структур на основе эпитаксиальных пленок высокотемпературного сверхпроводника $\text{YB}_2\text{C}_3\text{O}_{7.8}$ (YBCO). Методом рентген-дифракционных исследований эпитаксиальных с-ориентированных пленок YBCO показано существование поверхностной высокорезистивной кислородо-дефицитной фазы. Предполагается, что макроскопическое фазовое расслоение на поверхности пленок является определяющим фактором в формировании мемристивных свойств структур на основе YBCO.

The effects of oxygen doping on the resistive properties of planar memristive structures based on epitaxial films of the high-temperature superconductor $\text{YB}_2\text{C}_3\text{O}_{7.8}$ (YBCO) have been studied. The existence of a highly resistive oxygen-deficient surface phase was shown via X-ray diffraction studies of epitaxial c-oriented YBCO films. It is assumed that the macroscopic phase separation on the surface of the films is the determining factor in the formation of the memristive properties of structures based on YBCO.

Мемристор, резистор памяти, является развивающейся технологией для вычислительной техники [1]. Количество мемристоров, экспериментально разработанных сегодня, все время растет, но полного понимания механизма переключений, лежащего в основе той или иной мемристивной структуры, нет. Биполярный эффект резистивных переключений (БЭРП), лежащий в основе мемристоров, наблюдается в широком спектре металл-изолятор-металл (МИМ) структур с диэлектрическим слоем на основе простых оксидов или сложных соединений. В предыдущих работах [2] при исследовании БЭРП в структурах на основе сверхпроводящих пленок $\text{YB}_2\text{C}_3\text{O}_{7.8}$ (YBCO) было показано, как можно формировать мемристивные структуры с использованием функциональных свойств высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП). Два важных фактора должны быть выделены. Во-первых, считается, что родительскими соединениями ВТСП являются антиферромагнитные изоляторы мотта, а переход металл-изолятор может осуществляться при легировании кислородом [3]. Это обстоятельство является ключевым функциональным свойством $\text{YB}_2\text{C}_3\text{O}_{7.8}$, необходимым для формирования на их основе гетероструктур с БЭРП (YBCO БЭРП). Также было показано, что важным условием для обнаружения эффекта является наличие поверхностного слоя

(около 10 нм), дефицитного по кислороду с сопротивлением, отличным от объемного. Во-вторых, все изученные переходы могут быть выбраны как структуры с вертикальной или планарной геометрией. Первый тип включает в себя симметричные МИМ переходы, имеющие микро- и нанометровые размеры. В [2] показано, что в таких планарных структурах на резистивное переключение существенное влияние оказывает топология распределения электрического поля: при определенной полярности электрического поля происходит изменение фазового состава поверхностного слоя ВТСП в нанометровом масштабе. В результате реализуются метастабильные с высоким резистивным (off) и с низким резистивным (on) состояниями гетеропереходы с эффектом памяти мемристора (рис1).

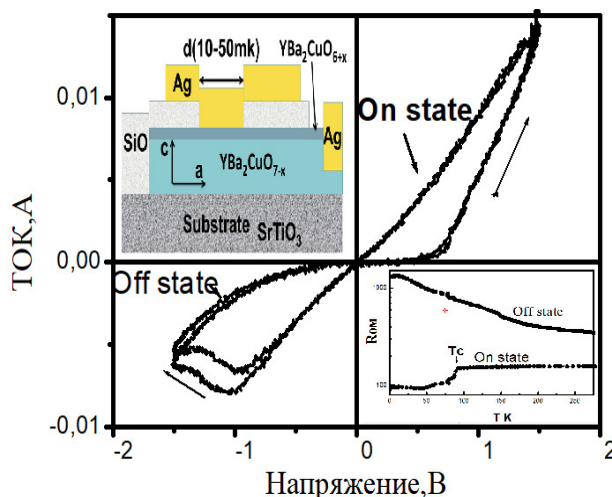


Рис.1 - Пример ВАХ мемристивной структуры $\text{Ag}/\text{YBCO}_6/\text{YBCO}_7$ на основе c -ориентированных пленок YBCO. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-d}$ - сверхпроводящая толстая пленка в пределах оптимального легирования с критической температурой сверхпроводящего перехода $T_c=89\text{-}90\text{K}$. Эта пленка (базовый низкорезистивный слой) служит металлическим электродом в мемристивных структурах

T_c у всех пленок контролировалась по резистивному переходу, когда ток направлен вдоль [110]. Обозначим этот слой « YBaCuO_7 ». $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\epsilon}$ – верхний тонкий неоднородный слой, с постепенно меняющимся к поверхности уровнями кислородного легирования (высокорезистивный слой), которые, однако, всегда находятся в пределах недодопированного режима. Обозначим этот слой как « YBaCuO_6 ». При таком определении наши планарные структуры будут обозначаться как $\text{Ag}/\text{YBaCuO}_6/\text{YBaCuO}_7$, где Ag и YBaCuO_7 - металлические электроды, YBaCuO_6 - сцена, где электрическое поле при развертке формирует перколяционный путь.

В большинстве исследований предполагается, что мемристивные эффекты свидетельствуют в пользу так называемой нитевидной модели с электроформинга, и процесс электроформования подтверждает нитевидный механизм резистивных переключений. В последнее время появилось несколько исследований, посвященных технологиям «нефиламентарной» энергонезависимой памяти на новых физических принципах, так называемых, МОТТ мемристоров [2].

В классе ВТСП YBCO исследована тщательно и всесторонне и была показана прямая связь величины кислородного допирования с внутренними свойствами [3, 4]. Предполагается, что в этом главную роль играет кислородное упорядочение вдоль цепочек O-Cu-O, которое разное в тетрагональной (диэлектрическая) и ортогональной (металлическая, сверхпроводящая) фазах. Именно переход из тетрагональной в орторомбическую фазу и существование фазового расслоения при определенном кислородном допировании являются проявлением МОТТ эффектов в ВТСП.

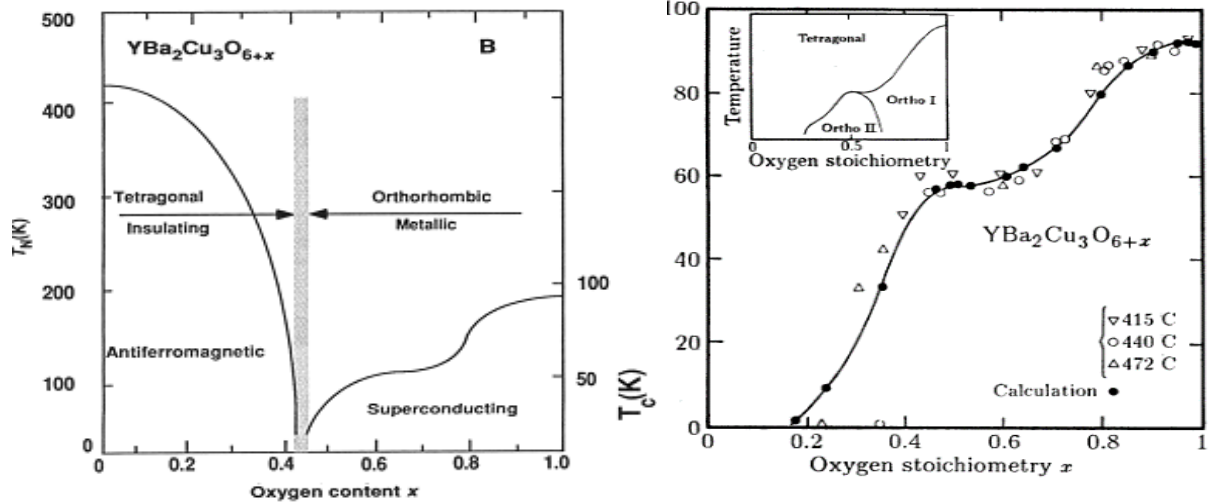


Рис.2 - а) Фазовая диаграмма YBCO [3], б) Температурная зависимость линии разделения фаз от степени легирования кислородом [4]

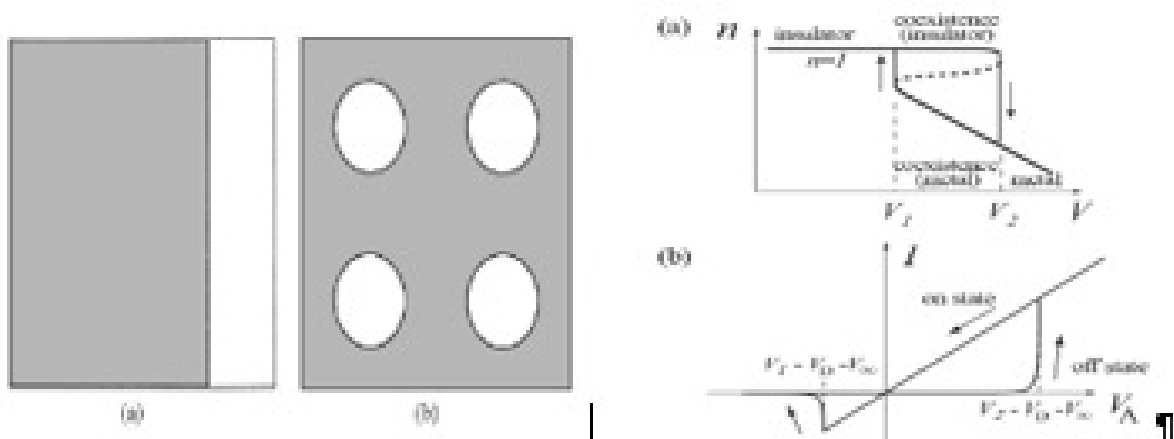


Рис.3 - а) Фазовое расслоение СКЭС в модели [5] (темное поле - металлическая фаза, светлое - диэлектрическая), б) БЭРП на границе металл-Моттовский диэлектрик в области существования фазового расслоения [6]

Структурное состояние эпитаксиальных YBaCuO_7 пленок проверялось на рентгеновском дифрактометре D500 (Siemens) с выходным графитовым монохроматором. Использовалось $\text{Cu-K}\alpha$ излучение. В дифракционных спектрах “с”- ориентированных эпитаксиальных пленок $\text{YBCO}(x)$ была обнаружена необычная форма рефлексов (007), а именно: с левой стороны каждого рефлекса образуется протяженное и достаточно интенсивное плечо. В качестве примера, на рис. 4 приведены дифракционные спектры отражений (007) и (0010). С учетом базы данных PDF-2 для отражения (007), на рис. 4(а) нанесена штрих-диаграмма положений этого отражения для составов $x=6.0$ и $x=7.0$.

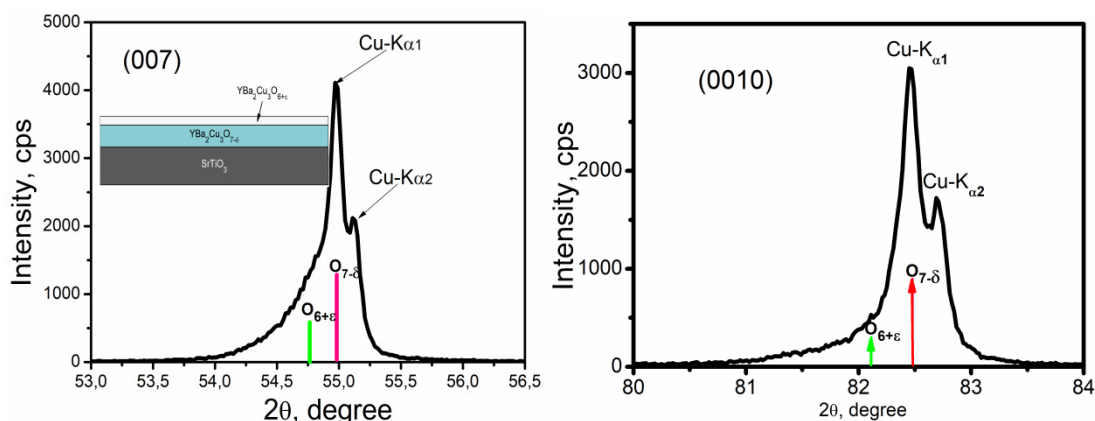


Рис.4 - Дифракционные спектры отражений (007) (а) и (0010) (б) эпитаксиальной пленки YBCO(x). Красные штрихи относятся к фазе YBCO₇, а зеленые штрихи - к фазе YBCO₆ из базы данных PDF-2 (узкий рефлекс справа - это отражение от Cu-K_α)

Ниже в таблице приведены результаты разложения спектров (007) и (0010) с помощью программного комплекса Diffrac-AT, поставляемого с дифрактометром D-500 (Siemens), на составляющие - недодопированную YBaCuO_{6+e} и орторомбическую, оптимально допированную YBCO₇, фазы.

Таблица 1:

(007)						
	PEAK	POSITION	HEIGHT	FWHM	AREA	
No.	2-th	d	Cps	2-th	(Norm.)	
1.	54.764	1.67485	447	0.414	237.4	“с YBaCuO _{6+e} ” = 11.7240
2.	54.989	1.66854	1496	0.117	245.2	“с YBCO ₇ ” = 11.6798
Reliability :		7.5 %				
(0010)						
	PEAK	POSITION	HEIGHT	FWHM	AREA	
No.	2-th	d	Cps	2-th	(Norm.)	
1.	82.142	1.17246	142	0.674	127.2	“с YBaCuO _{6+e} ” = 11.7246
2.	82.469	1.16864	1255	0.190	336.6	“с YBCO ₇ ” = 11.6864
Reliability :		6.1 %				

Корректность разложения подтверждается почти полным совпадением параметров “с”₀₇ “с”_{07-δ}, вычисленных из полученных данных межплоскостных расстояний для (007) и (0010), см. таблицу 1. Они следующие: <“с”> = 11.6864 Å для узкого интенсивного рефлекса и <“с”> = 11.7243 Å для широкого рефлекса. Значение <“с”> = 11.6864 Å соответствует литературным данным для состава YBa₂Cu₃O₇. Значение <“с”> = 11.7243 Å соответствует составу с концентрацией кислорода между O₆ и O₇.

Зависимости постоянных решетки от стехиометрии кислорода и переход от ромбической к тетрагональной симметрии с уменьшением содержания кислорода обсуждались в нескольких работах [7-9]. Большинство из этих исследований дают значение приблизительно δ = 0,64 для содержания кислорода при орторомбическом тетрагональном (O-T) переходе. Однако в некоторых исследованиях сообщается, что орторомбическая фаза распространяется на значительно более низкие стехиометрии кислорода (например, δ = 0,8). В настоящее время не ясно, представляют ли эти результаты внутреннее поведение, обусловленное стабильностью орторомбической фазы при низком содержании кислорода для образцов, закаленных при низкой температуре, или это просто проблемы с однородностью образца. Мы предполагаем, что наблюдаемая особенность в отражении (007) структуры YBCO₆/YBCO₇ связана с

присутствием другой фазы (высокорезистивной, как следует из эксперимента), но определить ее как тетрагональную или орторомбическую II из полученных данных пока не представляется возможным. В свете всего сказанного мы предполагаем, что такое фазовое расслоение возможно, и в пользу этого предположения свидетельствует доменный характер переходов между метастабильными фазами в электрическом поле и низкотемпературные свойства переколяционных каналов в мемристивных структурах YBCO [10].

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ №19-29-03021, а также в части государственных заданий Института Физики Твердого Тела РАН.

Список использованных источников:

1. Li, Y., Wang, Z., Midya, R., Xia, Q., Yang, J.J., J. Phys. D **51**, 503002 (2018).
2. Tulina .N.A., *arXiv.org > cond-mat > arXiv:1801.09428*(2018)
3. Pickett W E, Singh D J, Krakauer H and R. E. Cohen, *Science* **255** 46 (1992)
4. Picard c., p. Gerdanian, H. Moudde and G. Blanchin , *Radiation Effects and Defects in Solids*, **137**, 337(1995).
5. Moreo, A., Yunoki, S., Dagotto, E., *Science* **283**, 2034 (1999)
6. Oka T and N.Nagaosa, *Phys.Rev.Let.*, **95** (2005) 26640.
7. Jorgancen J.D, B.W. Veal et all , *Phys. Rev. B* **41** ,1863 (1990)
8. Ye, J. and Nakamura, K., *Phys. Rev. B* **48**, 7554 (1993).
9. Arpaia, R., Andersson, E., et al., *Phys. Rev. Materials* **2**, 024804 (2018).
10. Tulina, N. A., Rossolenko, A. N., Shmytko, I. M., Ivanov, A. A., Sirotkin, V. V., Borisenko, I. Yu., Tulin, V. A., *Supercond. Sci. Technol.* **32** 015003 (2019),