

DOI: <https://doi.org/10.17816/gc623422>

# Легированные азотом углеродные нанотрубки для автономных мемристивных систем

М.В. Ильина\*, О.И. Соболева, М.Р. Попыянкова, О.И. Ильин

Южный федеральный университет, Таганрог, Российская Федерация

## АННОТАЦИЯ

Мемристивные устройства являются одними из перспективных кандидатов для создания нейроморфных систем благодаря возможности многоуровневого переключения, низким рабочим напряжениям и высокой масштабируемости. Однако, как и для любого пассивного элемента, для работы мемриста необходимо внешнее напряжение смещения, что требует включения в цепь источника питания. В связи с этим большой интерес представляют работы по созданию мемристивных систем с автономным питанием, состоящих из последовательно соединённых друг с другом мемриста и наногенератора, преобразующего энергию внешней среды в электрическую [1, 2]. Такая мемристивная система имеет огромный потенциал применения в аэрокосмической области и имплантируемой электронике. На данный момент уже разработаны первые мемристорные и сенсорные системы с автономным питанием на основе оксидов металлов и пьезоэлектрических наногенераторов (ПЭНГ) [2]. Основные проблемы в данной области — уменьшение размера наногенератора и согласование выходных параметров наногенератора и входных параметров мемриста. В рамках настоящей работы данные проблемы решаются путём создания мемристорной системы с автономным питанием на основе легированных азотом углеродных нанотрубок (N-УНТ).

Ранее нами были исследованы мемристивные свойства N-УНТ и показано, что нанотрубки демонстрируют воспроизводимое многоуровневое переключение с отношением сопротивлений в высоко- и низкоомном состояниях (HRS/ LRS) около  $4 \times 10^5$  [3, 4]. При этом установлено, что мемристивный эффект в N-УНТ обусловлен внедрением атомов азота в структуру нанотрубки и формированием внутреннего пьезоэлектрического поля [4]. В рамках дальнейших исследований было показано, что массив вертикально ориентированных N-УНТ является перспективным материалом для создания ПЭНГ: генерируемое выходное напряжение составляет сотни милливольт, а генерируемый единичными нанотрубками ток достигает сотенnanoампер [5]. Полученные результаты позволяют говорить о возможности разработки мемристорной системы с автономным питанием либо путём последовательного соединения мемриста и ПЭНГ на основе N-УНТ.

Для оптимизации выходных характеристик ПЭНГ, в частности амплитуды генерируемого напряжения и входного напряжения переключения мемриста на основе N-УНТ, проведены исследования по увеличению пьезоэлектрического отклика и снижению напряжения переключения сопротивления N-УНТ путём изменения концентрации легирующей примеси азота в процессе роста нанотрубок. Было установлено, что для создания ПЭНГ с выходным напряжением до 2 В требуется рост N-УНТ с концентрацией легирующего азота до 12% и высоким аспектным соотношением длины к диаметру (более 60), что обеспечивается при низких температурах роста (500–550 °C) и высоком соотношении потоков ацетилена и амиака (1:5–1:6). Для изготовления мемристоров с минимальным напряжением переключения (около 2 В), напротив, требуется N-УНТ с малым аспектным соотношением (менее 30) и концентрацией легирующего азота 4–6%, что обеспечивается повышением температуры (до 615 °C) и уменьшением времени роста. Полученные результаты могут быть использованы при разработке мемристорных и сенсорных систем с автономным питанием на основе легированных азотом углеродных нанотрубок.

**Ключевые слова:** мемристор; углеродные нанотрубки; азот; автономные системы; наногенератор.

## Как цитировать:

Ильина М.В., Соболева О.И., Попыянкова М.Р., Ильин О.И. Легированные азотом углеродные нанотрубки для автономных мемристивных систем // Гены и клетки. 2023. Т. 18, № 4. С. 810–813. DOI: <https://doi.org/10.17816/gc623422>

## ДОПОЛНИТЕЛЬНАЯ ИНФОРМАЦИЯ

**Вклад авторов.** Все авторы подтверждают соответствие своего авторства международным критериям ICMJE (все авторы внесли существенный вклад в разработку концепции, проведение исследования и подготовку статьи, прочли и одобрили финальную версию перед публикацией).

Рукопись получена: 13.05.2023

Рукопись одобрена: 26.11.2023

Опубликована online: 20.01.2024

**Источник финансирования.** Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-79-10163 в Южном федеральном университете.

**Конфликт интересов.** Авторы декларируют отсутствие явных и потенциальных конфликтов интересов, связанных с публикацией настоящей статьи.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Shi J., Wang Z., Tao Y., et al. Self-powered memristive systems for storage and neuromorphic computing // Front Neurosci. 2021. Vol. 15. P. 662457. doi: 10.3389/fnins.2021.662457
2. Kim B.Y., Lee W.H., Hwang H.G., et al. Resistive switching memory integrated with nanogenerator for self-powered bioimplantable devices // Advanced Functional Materials. 2016. Vol. 26, N 29. P. 5211–5221. doi: 10.1002/adfm.201505569
3. Il'ina M.V., Il'in O.I., Osotova O.I., et al. Memristors based on strained multi-walled carbon nanotubes // Diamond and Related Materials. 2022. Vol. 123. P. 108858. doi: 10.1016/j.diamond.2022.108858
4. Il'ina M.V., Il'in O.I., Osotova O.I., et al. Memristive effect in nitrogen-doped carbon nanotubes // Nanobiotechnology Reports. 2021. Vol. 16, N 6. P. 821–828. doi: 10.1134/S2635167621060082
5. Il'ina M.V., Il'in O.I., Osotova O.I., et al. Pyrrole-like defects as origin of piezoelectric effect in nitrogen-doped carbon nanotubes // Carbon. 2022. V. 190. P. 348–358. doi: 10.1016/j.carbon.2022.01.014

## КОНТАКТНАЯ ИНФОРМАЦИЯ

\* М.В. Ильина; адрес: Российская Федерация, 347922, Таганрог, ул. Шевченко, д. 2, корпус Е; e-mail: mailina@sfedu.ru

DOI: <https://doi.org/10.17816/gc623422>

# Nitrogen-doped carbon nanotubes for self-powered memristive systems

M.V. Il'ina\*, O.I. Soboleva, M.R. Polyvianova, O.I. Il'in

Southern Federal University, Taganrog, Russian Federation

## ABSTRACT

Memristive devices are a promising candidate for creating neuromorphic systems because of their multilevel switching capability, low operating voltages, and high scalability. However, as with any passive element, the memristor necessitates an external bias voltage to operate, necessitating the incorporation of a power source in the circuit. Of considerable interest are studies involving the development of self-sustaining memristive systems that employ a memristor and a nanogenerator connected in series, which transforms energy from the surrounding environment into electrical energy [1, 2]. A memristive system shows significant potential for use in aerospace and implantable electronics. Currently, researchers have developed the initial self-powered memristive and sensor systems using metal oxides and piezoelectric nanogenerators (PENG) [2]. The major challenges in this field include downsizing the nanogenerator and ensuring that the output parameters of the nanogenerator match the input parameters of the memristor. In this study, we are addressing the aforementioned issues by developing a self-sustaining memristive system using nitrogen-doped carbon nanotubes (N-CNTs).

Previously, we investigated the memristive properties of N-CNTs and demonstrated their reproducible multilevel switching, with a resistance ratio in the high- and low-resistance states (HRS/LRS) of approximately  $4 \times 10^5$  [3, 4]. Our findings revealed that the incorporation of nitrogen atoms into the nanotube structure and the formation of an internal piezoelectric field were responsible for the memristive effect in N-CNTs [4]. As part of our research, we discovered that an array of vertically aligned N-CNTs holds promise as a material for creating PENG. The resulting output voltage can reach hundreds of millivolts while the current generated by a single nanotube can exceed hundreds of nanoamperes [5]. These findings suggest the potential for developing a self-powered memristive system by connecting a memristor and a PENG based on N-CNTs in series.

To optimize the output characteristics of the PENG, specifically the amplitude of the generated voltage and the input switching voltage of the N-CNT-based memristor, experiments were conducted to enhance the piezoelectric response and lower the switching voltage of the N-CNT resistance. These experiments involved modifying the concentration of dopant nitrogen during the nanotube growth process. It is necessary to grow N-CNTs with a high aspect ratio of length to diameter (greater than 60) to create PENG with an output voltage of up to 2 V. The N-CNTs should be doped with nitrogen up to 12%, and growth should occur at a low temperature (500–550 °C) with a high ratio of acetylene and ammonia flows (1:5–1:6). On the other hand, the production of memristors with a minimum switching voltage (about 2 V) necessitates N-CNTs with a small aspect ratio (less than 30) and doping nitrogen concentrations of 4–6%. To obtain these N-CNT parameters, the growth temperature must be raised to 615 °C and the growth time reduced. The findings obtained could be used to fabricate nitrogen-doped carbon nanotube-based self-powered memristive and sensor systems.

**Keywords:** memristor; carbon nanotubes; nitrogen; self-powered systems; nanogenerator.

## To cite this article:

Il'ina MV, Soboleva OI, Polyvianova MR, Il'in OI. Nitrogen-doped carbon nanotubes for self-powered memristive systems. *Genes & cells*. 2023;18(4):810–813.  
DOI: <https://doi.org/10.17816/gc623422>

## ADDITIONAL INFORMATION

**Authors' contribution.** All authors made a substantial contribution to the conception of the work, acquisition, analysis, interpretation of data for the work, drafting and revising the work, final approval of the version to be published and agree to be accountable for all aspects of the work.

**Funding sources.** The study was supported by the Russian Science Foundation grant No. 22-79-10163 at the Southern Federal University.

**Competing interests.** The authors declare that they have no competing interests.

Received: 13.05.2023

Accepted: 26.11.2023

Published online: 20.01.2024

## REFERENCES

1. Shi J, Wang Z, Tao Y, et al. Self-powered memristive systems for storage and neuromorphic computing. *Front Neurosci.* 2021;15:662457. doi: 10.3389/fnins.2021.662457
2. Kim BY, Lee WH, Hwang HG, et al. Resistive switching memory integrated with nanogenerator for self-powered bioimplantable devices. *Advanced Functional Materials.* 2016;26(29):5211–5221. doi: 10.1002/adfm.201505569
3. Il'ina MV, Il'in OI, Osotova OI, et al. Memristors based on strained multi-walled carbon nanotubes. *Diamond and Related Materials.* 2022;123:108858. doi: 10.1016/j.diamond.2022.108858
4. Il'ina MV, Il'in OI, Osotova OI, et al. Memristive effect in nitrogen-doped carbon nanotubes. *Nanobiotechnology Reports.* 2021;16:821–828. doi: 10.1134/S2635167621060082
5. Il'ina MV, Il'in OI, Osotova OI, et al. Pyrrole-like defects as origin of piezoelectric effect in nitrogen-doped carbon nanotubes. *Carbon.* 2022;190(312):348–358. doi: 10.1016/j.carbon.2022.01.014

## AUTHORS' CONTACT INFO

\* M.V. Il'ina; address: 2 bldg E Shevchenko street, 347922 Taganrog, Russian Federation; e-mail: mailina@sfedu.ru