

PACS numbers: 71.20.-b, 71.55.-i, 72.20.Ht, 75.50.Bb, 85.75.Dd

Вплив домішок на електрофізичні властивості магнетного тунельного переходу

В. О. Бурлаков, О. Є. Погорелов, О. В. Філатов

*Інститут металофізики ім. Г. В. Курдюмова НАН України,
бульв. Академіка Вернадського, 36,
03142 Київ, Україна*

У роботі розглянуто вплив домішок на вольт-амперні характеристики тонкоплівкової структури магнетного тунельного переходу (MTJ) — Fe/MgO/Fe з метою поліпшення електротранспортних властивостей. Це було досягнуто за рахунок створення умов для виникнення в ній вольт-амперної характеристики (ВАХ) з негативним диференціальним опором (НДО), на кшталт ВАХ тунельного діоду. Обґрунтовано утворення такої властивості за рахунок введення електропровідної домішки (Карбону) в інтерфейсний простір між одним з шарів заліза і діелектриком, яка відповідним чином змінює положення рівня Фермі. Виявлено прояв деградаційного впливу електродифузійних процесів на властивості вольт-амперної характеристики та запропоновано підходи до її стабілізації. Розглянуто можливість використання MTJ-систем з НДО для створення комірок пам'яті MRAM.

Ключові слова: спінтроніка, MTJ, енергія Фермі, вольт-амперна характеристика, негативний диференціальний опір, електродифузія.

This work describes the effect of the impurity atoms on the current–voltage (I – V) characteristics of the thin-film structure of magnetic tunnel junction (MTJ) of Fe/MgO/Fe in order to improve the electrotransport properties. This is achieved by creating in the structure the conditions for the occurrence of I – V characteristic with negative differential resistance (NDR), such as the

Corresponding author: Viktor Oleksandrovych Burlakov
E-mail: odinpwnzpacan@gmail.com

*G. V. Kurdyumov Institute for Metal Physics, N.A.S. of Ukraine,
36 Academician Vernadsky Blvd., UA-03142 Kyiv, Ukraine*

Citation: V. O. Burlakov, O. E. Pogorelov, and O. V. Filatov, Impact of Impurity Atoms on the Electrophysical Properties of Magnetic Tunnel Junction, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, 42, No. 7: 919–928 (2020) (in Ukrainian), DOI: [10.15407/mfint.42.07.0919](https://doi.org/10.15407/mfint.42.07.0919).

I – V characteristic of a tunnel diode. The formation of this property is justified due to the introduction of electrically conductive impurity atoms (Carbon) into the interface space between one of the iron layers and the dielectric, which accordingly changes the position of the Fermi level. The manifestation of the destabilizing effect of electrodiffusion processes on the properties of the I – V characteristics is revealed, and means for its stabilization are proposed. The possibility of using MTJ systems with NDR to create MRAM memory cells is considered.

Key words: spintronics, MTJ, Fermi energy, I – V characteristic, negative differential resistance, electrodiffusion.

(Отримано 12 лютого 2020 р.; остаточн. варіант — 19 березня 2020 р.)

1. ВСТУП

Створення нових систем для зчитування, запису та збереження інформації на основі магнетних тунельних переходів (МТJ) потребує постійного поліпшення їх характеристик, основною з яких є величина тунельного магнетного опору (ТМР). Забезпечення його прийняттого значення зазвичай досягають шляхом створення і застосування магнетних матеріалів з високими коефіцієнтами спінової поляризації. Оскільки вибір таких матеріалів досить обмежений, параметри МТJ-структури можна покращувати коригуванням її вольт-амперної характеристики (ВАХ). У роботі [1] це було досягнуто за рахунок підключення до МТJ системи додаткового елемента типу тунельного діода, який має ВАХ з негативним диференціальним опором (НДО). Проте відомо, що підключення додаткових елементів призводить до зменшення надійності електронних систем і додаткових складнощів у їх виготовленні. Виключити використання додаткових елементів можна, забезпечивши створення ВАХ з ділянкою негативного диференційного опору (НДО) у самій МТJ-системі, про що йдеться в [2, 3].

Першопринципні розрахунки, виконані в роботах [4, 5], показали принципову можливість виникнення НДО на ВАХ в МТJ-системах типу Fe/MgO/Fe та з кристалами AlO_x або $\text{Mg}_{1-x}\text{Al}_x\text{O}$ як бар'єрних матеріалів. Автори пояснюють можливість зміни ширини забороненої зони за рахунок катіонного допущення. Проте, в зазначених роботах не пояснено механізм виникнення області ВАХ з НДО.

Виникнення у системі феромагнетик–діелектрик–феромагнетик ВАХ з НДО теоретично обґрунтовано в роботі [6]. В ній стверджується, що утворення області з НДО може відбуватися завдяки зниженню рівня Фермі феромагнетика до рівня нижче середини забороненої зони діелектрика. У такому випадку напруга зміщення U зсуває рівні електронів, які тунелюють, в область меншої бар'єрної прозорості. На думку авторів, це призводить до зменшення тунель-

ного струму зі зростанням напруги i , як наслідок, на вольт-амперних характеристиках виникає область з від'ємною диференційною провідністю.

Вперше експериментально ділянку з НДО на ВАХ МТJ-структури було одержано введенням в неї певної кількості провідної домішки під час напорошення діелектричного прошарку [2, 3]. Автори пояснювали появу НДО створенням у забороненій зоні діелектрика локальних рівнів провідності [2]. Це дозволило одержати у такій достатньо простій структурі ТМР, розрахункове значення якого перевищило 30%. Одержані результати спонукали до додаткових досліджень, результати яких допомогли б розібратись в механізмі виникнення НДО на ВАХ МТJ-структури.

2. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧІ ТА ЕКСПЕРИМЕНТ

У згаданій вище роботі [6] розрахунок проводили для системи $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe}$. У МТJ-системах на основі Fe використання як діелектрика MgO демонструє кращі показники спряженості кристалічних ґратниць порівняно з Al_2O_3 . Завдяки цьому зменшуються механічні напруження між шарами плівок та кількість дефектів, що призводить до збільшення значення тунельного струму, коефіцієнта спінової поляризації [7] та, як результат, ТМР.

Хоча сьогодні у сучасних приладах МТJ використовують складніші багат шарові системи та сполуки як феромагнетні шари, в даній роботі використовували спрощену за кількістю шарів систему

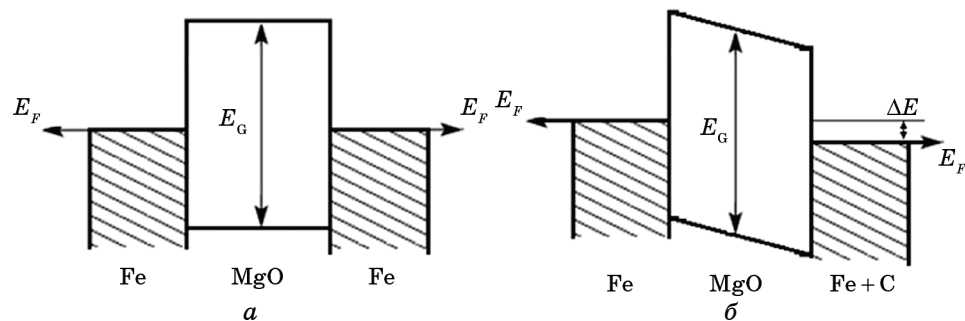


Рис. 1. Потенціальна діаграма тришарової наноплівкової структури $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{Fe}$: з чистими матеріалами (а), після взаємодії домішок з одним із шарів (б); E_F — енергія Фермі для заліза, E_G — ширина забороненої зони оксиду магнію.

Fig. 1. Potential diagram of $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{Fe}$: with pure materials (a), after the interaction of impurities with one of the layers (b); E_F is Fermi energy for Fe, E_G is band gap of the magnesium oxide.

Fe/MgO/Fe. Це дозволило зменшити кількість параметрів для розрахункової частини і спростити експеримент.

Додавання домішок також може впливати на положення рівня Фермі, якщо при цьому зміниться локальна концентрація електронів. Так, в роботі [8] розрахунковим шляхом показано, що збільшення вмісту Карбону у залізі може понизити рівень Фермі.

Враховуючи вищесказане, в роботі перевірено можливість одержання НДО в системі феромагнетик–діелектрик–феромагнетик за рахунок легування одного із феромагнетних шарів вуглецем. За аналогією з [6] проведено розрахунки зонної структури, але як діелектрик використано прошарок з MgO. У результаті для структури на основі чистих матеріалів Fe–MgO–Fe одержано зонну будову, яка схематично має вигляд, зображений на діаграмі (рис. 1, *а*), на якій енергія Фермі заліза розташована посередині [6] забороненої зони MgO.

Як вже згадувалось вище, з огляду на [7], необхідне зміщення положення рівня Фермі, про яке вказано у роботі [6], можна досягнути введенням Карбону в інтерфейс між шарами MgO і Fe (рис. 1, *б*) з подальшим дифузійним відпалом. У такому разі рівень енергії Фермі у залізі з Карбоном змінюється на величину $\Delta E \sim 1\text{--}1,5$ еВ, яка визначається половиною контактної різниці потенціалів між чистим залізом та його шаром з Карбоном. Оскільки в одержаній структурі лише один із шарів заліза легований домішками, то це призведе до пониження енергії Фермі відповідного з контактів, що наведено на потенціальній діаграмі системи Fe/MgO/(Fe + C) (рис. 1, *б*).

Виготовлення багатошарової наноплівкової системи (Fe + C)/

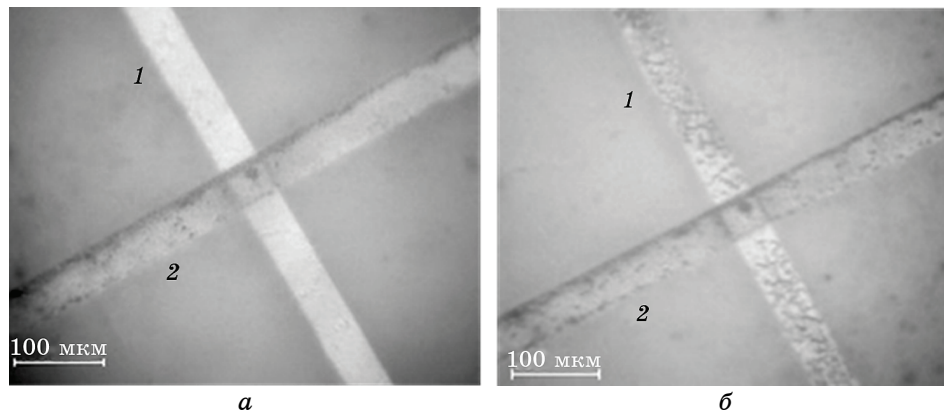


Рис. 2. Металлографічні знімки одного з переходів: після напорошення останнього шару заліза (*а*), одразу після вимірювання ВАХ (*б*).

Fig. 2. Metallographic images of one of the transitions: after spraying the last layer of iron (*a*), immediately after measuring the CVC (*b*).

MgO/Fe виконували послідовним напорошенням відповідних елементів через маски на підкладку з ситалу типу СТ50-2 із шорсткістю поверхні 0,032 мкм за допомогою електронно-променевого розпорошення в установці ВУП-5м. Тиск на початку напорошення був не більше за $7 \cdot 10^{-5}$ торр. Швидкість напорошення елементів складала 1 нм/хв. Карбон, який використовували як домішки, напорошували товщиною декілька нанометрів одразу після першого феромагнетного шару і нагрівали до температури 600 К з витримкою в 30 хв для забезпечення дифузії Карбону у залізі. На сформований шар послідовно напорошували шари діелектрика (6.5 нм) та заліза (40 нм). У результаті одержували матрицю з 16 переходів у місці перехрещення 8 доріжок заліза, зображення одного з яких представлено на рис. 2. З фото видно, що шар заліза — 1, який знаходиться під діелектриком, не зазнає окиснення, на відміну від верхнього шару.

Для вимірювання вольт-амперних характеристик зразка використовували модифікований метод вольтметра-амперметра, а саме з двома вольтметрами, спряженими з персональним комп'ютером для автоматичного запису величин. Одним вольтметром вимірювали падіння напруги на МТJ-переході, іншим — зміну напруги на додатковому, відомому опорі R_d , що складав 22 кОм. Додатковий опір було введено для стабілізації струму через перехід та компенсації внутрішнього опору вольтметра з метою поліпшення його чутливості. Напругу змінювали в діапазоні від 0 до 3 В, аби за товщини діелектрика в 65 Å не перевищити напруги його пробою, що за розрахунками складає 3,8 В.

3. РЕЗУЛЬТАТИ І ОБГОВОРЕННЯ

Характерний вигляд ВАХ одержаної МТJ-структури після ряду вимірювань зображено на рис. 3.

Як видно з наведеної ВАХ, в діапазоні 2,2 В спостерігаються *N*-подібні ділянки з НДО, що є характерними для тунельного діода. Саме за досягнення такої величини напруги в 2,2 В виконані в [4] розрахунки моделі для системи Fe/Al₂O₃/Fe передбачають на ВАХ зменшення струму при зростанні напруги.

Виявилось (див. рис. 3), що на ВАХ одержаного МТJ, область з НДО при повторних вимірюваннях зменшується і, згодом, взагалі зникає. Як показано в [2], деградаційні процеси в МТJ-переході за наявності домішок можуть бути пов'язані з протіканням дифузійного перерозподілу домішок між феромагнетиком та діелектриком. Такий процес ймовірно стимульовано протіканням через перехід вимірювальних струмів, що призводить до зниження локальної концентрації домішки та її впливу на енергію Фермі системи. Тому на ВАХ згодом зникає область з НДО, а сам тип провідності зміню-

ється з тунельного на омичний (рис. 3, в). За оцінками [2] коефіцієнт дифузії Карбону у MgO складає близько $\sim 10^{-19} \text{ см}^2/\text{с}$, що більше ніж на десять порядків перевищує коефіцієнт об'ємної дифузії металів в MgO за кімнатної температури. Така величина коефіцієнта дифузії, вірогідність прискорення якої детально розглянуто в роботі [9], може бути спричинена протіканням електричного струму достатньої густини через перехід.

Про можливість протікання процесів електродифузії свідчить металографічний знімок переходу після зйомки ВАХ (рис. 2, б).

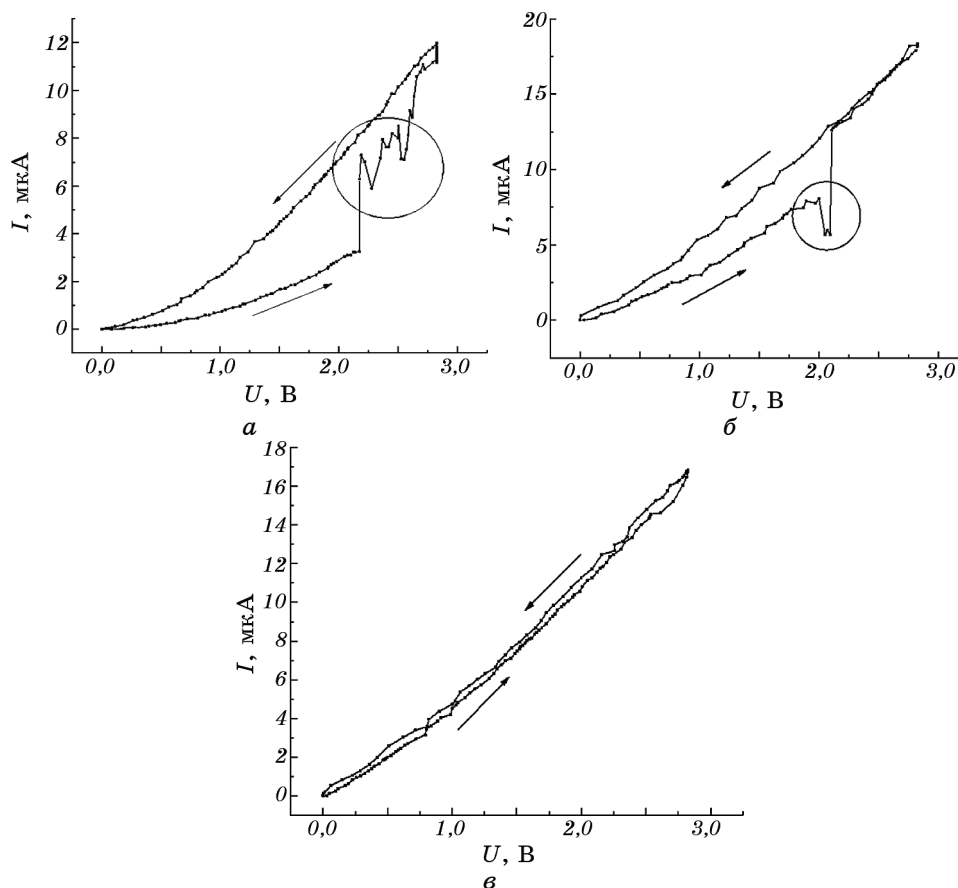


Рис. 3. ВАХ тришарової МДМ структури Fe/MgO/Fe при: першому (а), повторному (б) та подальших вимірюваннях (в); стрілки показують напрямки зростання чи спадання напруги при вимірюванні.

Fig. 3. CVC of a three-layer MDM structure of Fe/MgO/Fe at: the first (a), repeated (b) and subsequent measurements (v); the arrows show the direction of increase or decrease of the voltage during the measurement.

Характерну пухирниковість на плівках після протікання струму в роботі [10] пояснювали електродифузією домішок. Про наявність такого процесу також може свідчити зміна електричного струму в процесі вимірювання (рис. 4).

Ширина доріжок в досліджуваному зразку складає 50 мкм, отже площа самого МТJ-переходу становить $2,5 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2$. За оцінками середня густина струму на МТJ-переходах становить приблизно $J \sim 0,4 \text{ А/см}^2$. У роботі [9] говориться, що процеси електродифузії Вуглецю в Залізо відбуваються за густини струму $\sim 1,5 \cdot 10^3 \text{ А/см}^2$. Проте на швидкість цього процесу можуть впливати і багато інших чинників: локальні перегрівання провідників, структура плівки, її рельєф чи топологія, типи і щільність дефектів [10]. Припускається, що струм на одержаному МТJ-переході протікає не по всій площі, а через локальні області, що спричинено нерівномірною товщиною діелектрика. Оксид магнію має кубічну ґратницю з періодом $4,212 \text{ Å}$. За напорошення діелектрика товщиною 65 Å (ця величина є середньою) реальна товщина по поверхні МТJ-переходу могла змінюватися в межах $33\text{--}90 \text{ Å}$.

Розрахунок тунельного струму для досліджуваної МТJ-системи виконано за наведеною в роботі [4] методикою. Для нашої системи використано наступні параметри: ширина забороненої зони діелектрика $E_G = 7,7 \text{ еВ}$, енергія Фермі металу $E_F = 11 \text{ еВ}$ та ефективні маси електрона m в кожному із шарів, відповідно до рис. 1, в лівому

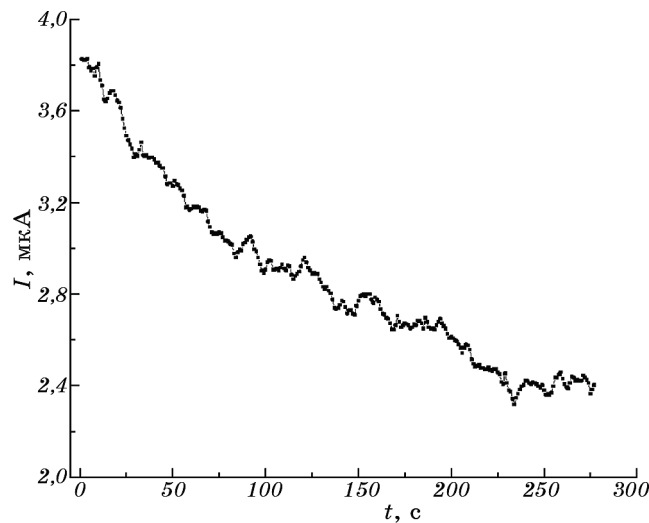


Рис. 4. Зміна сили струму з часом для одного із переходів за підтримки сталої напруги у 3 В.

Fig. 4. Change of current with time for one of the transitions under the influence of constant voltage of 3 V.

феромагнетному шарі, діелектрика та правому феромагнетному шарі — $m_1 = 1,27m$, $m_2 = 0,4m$, $m_3 = 1,36m$. Одержаний розрахунковий графік тунельного струму корелює з експериментальними даними (рис. 5) за товщини діелектрика $d = 33,7 \text{ \AA}$.

За збільшення товщини діелектрика на один період ґратниці ($4,212 \text{ \AA}$), сила струму зменшується в 100 разів за напруги в 3 В. Це означає, що струм ефективніше протікає не крізь всю поверхню діелектрика, а, вірогідніше, через локальні області з найменшою товщиною, площа яких складає декілька відсотків від загальної площі переходу. Отже і густина струму може бути на порядок більша $\sim 10^2 \text{ A/cm}^2$. Враховуючи, що підкладка, на яку напорошувалась плівка, має певну шорсткість ($R_z = 0,032 \text{ мкм}$), отже, і поверхня плівки буде шорсткою. Це призводить до наявності рельєфу та додаткових дефектів, що також сприяє внеску до транспортних явищ з дифузійними процесами.

Таким чином, деградаційні процеси, що відбуваються у МТJ-переході з наявною областю НДО на його ВАХ, можна пояснити наступним. Внаслідок протікання через МТJ-перехід локальних струмів, величина густини яких є достатньою для протікання електродифузії домішки, її концентрація на інтерфейсі зменшується. Такий процес з кожним вимірюванням (рис. 3) наближує ситуацію, зображену на рис. 1, б, до первинної енергетичної діаграми (рис. 1, а), внаслідок чого на ВАХ поступово зникає область НДО і ВАХ приймає

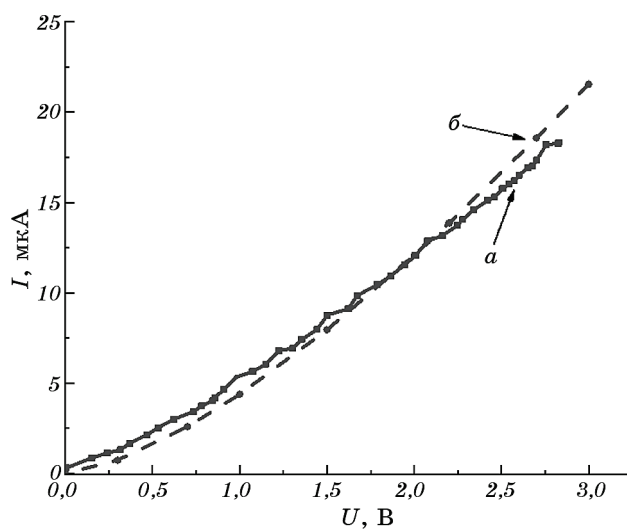


Рис. 5. ВАХ системи Fe\MgO\Fe: за підсумками розрахунків (а), одержана експериментально (б).

Fig. 5. CVC of Fe\MgO\Fe system: the results of calculations (а), the results obtained experimentally (б).

вигляд, характерний для металічного характеру провідності (рис. 3, е). До того ж, розвиненню дифузійних процесів може сприяти нагрів струмопровідних доріжок, про що свідчать пухирці по всій довжині (рис. 2, б). Це узгоджується з даними роботи [10], в якій такий ефект пояснюється проходженням струму великої густини, які за оцінками і в нашому випадку складають близько 10^3 A/cm^2 .

Запобігти небажаному зниженню концентрації легуючої домішки, що забезпечує утворення НДО на ВАХ та може стабілізувати властивості МТJ з НДО, можливо введенням додаткових домішок або прошарків, що блокують небажані дифузійні процеси.

4. ВИСНОВКИ

Обґрунтовано і експериментально реалізовано ідею створення НДО на ВАХ МТJ-структури $[\text{Fe}(40 \text{ нм}) + \text{C}]/\text{MgO}(6,5 \text{ нм})/\text{Fe}(25 \text{ нм})$ внаслідок введення домішки Карбону в інтерфейс Fe/MgO з подальшим використанням дифузійного відпалу. Деградаційні процеси в МТJ пояснено електродифузією домішки, яка зменшує її концентрацію на інтерфейсі, необхідну для утворення НДО на ВАХ МТJ. Це доводить принципову можливість керувати ВАХ МТJ-структури задля поліпшення її перемикальних властивостей. Для забезпечення стабільності одержаних МТJ з НДО і подальшої можливості їх застосування у комірках пам'яті MRAM запропоновано введення домішок або прошарків, що блокують небажані дифузійні процеси.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА—REFERENCES

1. T. Uemura, S. Honma, T. Marukame, and M. Yamamoto, *Japanese J. Applied Physics*, **43**, No. 1A/B: L44 (2003).
2. A. Pogorelov, A. Filatov, and Ye. Pogoryelov, *phys. status solidi (b)*, **251**, Iss. 1: 172 (2014).
3. O. E. Pohorelov, O. V. Filatov, E. O. Pohoryelov, and K. M. Khranov's'ka, *Sposib Stvorenniya Komirky Mahnitnoyi Pam'yati* [The Method of Creating a Magnetic Memory Cell], Ukrainian Patent No. 105875 (Published June 25, 2014) (in Ukrainian).
4. Mayank Chakraverty and Harish M. Kittur, *International J. Micro and Nano Systems*, **2**(1): 1 (2011).
5. Jun Jiang, X.-G. Zhang and X. F. Han, *EPL*, **114**, No. 1: 17005 (2016).
6. T. A. Khachaturova, M. A. Beloholovskyy, and A. Y. Khachaturov, *Metallfiz. Noveishie Tekhnol.*, **30**, No. 7: 899 (2008).
7. S. S. Parkin, *Nature Materials*, **3**: 862 (2004).
8. H. A. Bakay, M. P. Bratushchak, and A. S. Kuzema, *J. Nano- Electronic Physics*, **1**, No. 4: 110 (2009).
9. P. P. Kuz'menko, *Elektroperenos, Termoperenos i Diffuziya v Metallakh* [Electric Transport, Thermal Transfer and Diffusion in Metals] (Kyiv: Vyshcha

Shkola: 1983) (in Russian).

10. K. N. Tukmakov and A. V. Arhipov, *Vestnik Samarskogo Gosudarstvennogo Aerokosmicheskogo Universiteta im. Akademika S. P. Korolyova*, No. 1: 185 (2010) (in Russian).