Metallophysics and Advanced Technologies Memaлoфis. новітні технол. Metallofiz. Noveishie Tekhnol. 2023, vol. 45, No. 2, pp. 157–168 https://doi.org/10.15407/mfint.45.02.0157 Reprints available directly from the publisher

PACS numbers: 73.61.Ng, 77.22.Jp, 77.55.+f, 81.07.Lk, 81.70.Bt, 84.37.+q

Вплив товщини діелектрика та площі контакту на електричні властивості системи Fe/MgO/Fe

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

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

За допомогою оригінальної методики в роботі досліджено електричні властивості тунельної тонкоплівкової системи Fe/MgO/Fe, у якої одним із металевих елементів виступав залізний зонд, що контрольовано заглиблювався в об'єм діелектрика. Це дозволило дослідити електричні властивості системи Fe/MgO/Fe за зміни фізичних параметрів, таких як площа контакту та товщина діелектрика. За отриманими результатами провідності для системи Fe/MgO/Fe визначено коефіцієнти та закономірності, що дали змогу аналітично розраховувати вольт-амперні характеристики в широкому діапазоні товщини діелектрика та площі контакту. Встановлено, що опір тунельної системи Fe/MgO/Fe має немонотонну залежність від товщини діелектрика та зростає приблизно в 3 рази при збільшенні товщини MgO на 0,21 нм. Збільшення площі контакту призводить до лінійного зменшення опору системи Fe/MgO/Fe зі збереженням величини густини струму та наближенню експериментальної вольт-амперної характеристики до лінійної залежності. Це пов'язували з впливом локальних областей провідності, що виникають за рахунок дефектів та домішок, на характер провідності системи. За допомогою електричного пробою діелектрика для отриманих вольт-амперних характеристик визначалась товщина діелектрика і гранична напруга, за якої зберігається тунельний характер провідності. Встановлено, що в діапазоні товщин МдО 1-4 нм діелектрична міцність зростає до 6,6 МВ/см, а в діапазоні 4-10 нм зменшу-

Corresponding author: Oleksandr Valentynovych Filatov E-mail: filatov@imp.kiev.ua

G.V. Kurdyumov Institute for Metal Physics, NAS of Ukraine, 36 Academician Vernadsky Blvd., UA-03142 Kyiv, Ukraine

Citation: V. O. Burlakov, O. Ye. Pohorelov, and O. V. Filatov, Impact Dielectric Thickness and Contact Area on Electrical Properties of Fe/MgO/Fe System, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **45**, No. 2: 157–168 (2023) (in Ukrainian). DOI: 10.15407/mfint.45.02.0157

157

ється до 6,2 MB/см.

Ключові слова: оксид магнію, тунельний струм, товщина діелектрика, площа контакту, діелектрична міцність, вольт-амперна характеристика.

In this paper, the electrical properties of the Fe/MgO/Fe tunnel system are studied using an original technique, in which upper metal element was an iron probe inserted into the dielectric in a controlled manner. This makes it possible to study the electrical properties of the Fe/MgO/Fe system upon changing the physical parameters such as contact area and dielectric thickness. Based on the obtained results of the conductivity measurements, the corresponding approximation coefficients are determined. This allows to analytically calculating the I-V characteristics in a wide range of dielectric thickness and contacting area. It is established that the resistance of the Fe/MgO/Fe system is non-monotonically dependent on the dielectric thickness and growth in ~ 3 times when the MgO thickness increases by 0.21 nm. An increase of the contact area leads to a linear decrease of the resistance of the Fe/MgO/Fe system while preserving the value of current density and approaching the experimental I-V characteristic to a linear dependence. This effect is attributed to the influence of local areas of conductivity, arising due to the defects and impurities, on the specifics of the conductivity of the whole system. The thickness of the dielectric and the limit voltage, at which the tunnel type of conductivity is preserved, are determined from *I*-*V* characteristics during the process of electrical breakdown of the dielectric. It was established that the dielectric strength increases to 6.6 MV/cm for the MgO thicknesses ranging from 1 nm to 4 nm and decreases to $6.2 \,\mathrm{MV/cm}$ in the range from 4 nm to 10 nm.

Key words: magnesium oxide, tunnel current, dielectric thickness, contact area, dielectric breakdown, I-V characteristic.

(Отримано 28 грудня 2022 р.; остаточн. варіянт — 12 січня 2023 р.)

1. ВСТУП

Необхідність у нарощуванні щільності пам'яті, портативність сучасних інформаційних пристроїв та зменшення енерговитрат стимулює пошуки та застосування нових типів пам'яті. Перспективною наразі є енергонезалежна пам'ять нового покоління — магнетна пам'ять з довільним доступом (MRAM) на основі магнетного тунельного переходу. Цей тип пам'яті демонструє низькі витрати енергії [1], компактність [2], високу швидкодію [3] та майже відсутність обмеження на кількість циклів запису чи стирання біту інформації і легку інтеграцію зі схемами CMOS [4]. Однак більшість механізмів перемикання (переорієнтації намагніченості) вимагають високої густини струму [5]. Це спонукає до створення структур з малою площею контакту та товщиною діелектрика [6], що в результаті може призводити до Джоулевого перегріву [7], стимуляції електродифузійних процесів [8] і діелектричного пробою в тонкоплівкових тунельних системах [9]. На шляху до масштабного комерційного застосування MRAM стоїть комплексне вирішення нагальних проблем.

Тонкоплівкова система Fe/MgO/Fe може слугувати магнітним тунельним переходом — системою, в якій два феромагнетики розділені тонким шаром ізолятора. Якщо ізоляційний шар дуже тонкий (нанометри), то електрони, що відповідальні за електричну провідність, можуть тунелювати від одного електроду до іншого. Існує декілька аналітичних моделей, які дозволяють розраховувати тунельний струм в залежності від висоти потенціального бар'єра та товщини діелектрика [10] з урахуванням густини електронних станів в металах [11]. Однак необхідно з обережністю підходити до прогнозування експериментальних результатів, виходячи із розрахункових даних. Це пов'язано з рядом фізичних параметрів, які не враховуються в розрахунках, але можуть додати суттєвий внесок в величину тунельного струму. До них відносяться: спінова залежність густини станів магнітних електродів, спряженість кристалічних ґратниць, можливість тунелювання через «гарячі точки». Це є місця, де бар'єр тонший, спостерігається стрибкова провідність через локалізовані стани в бар'єрі, пов'язані з наявністю домішок, та локальні отвори у бар'єрі, де провідність є омічною.

На практиці це доповнюється проблемою коректного визначення величини густини струму, оскільки при виготовлені тунельних систем шерсткість підкладинки та спосіб напорошення можуть призводити до нерівномірності товщини діелектрика по площі контакту. В результаті струм, що протікає через систему, складається із суми потоків для всіх наявних значень товщини діелектрика. Це, в свою чергу, ускладнює оцінку впливу густини струму на довговічність та стабільність системи.

Враховуючи фундаментальний та прикладний інтерес до процесів, що відбуваються в тунельних системах, існує необхідність в проведенні комплексного дослідження електричних властивостей системи Fe/MgO/Fe в широкому діапазоні товщин діелектрика та площі контакту, що дозволить зробити узагальнюючі висновки щодо характеру провідності системи.

2. МЕТОДИКА І МАТЕРІЯЛИ

Для дослідження електричних властивостей тонкоплівкових тунельних систем було розроблено оригінальну методику, що уможливлює реєструвати вольт-амперні характеристики за зміни фізичних параметрів контакту: товщини діелектрика та площі контакту. З цією метою було модифіковано пристрій кінетичного індентування установки УПМ-11 таким чином, що навантаження прикладалося через п'єзоелектричний актуатор до залізного зонда, який розміщено замість алмазної пірамідки. Зонд під'єднано в схему вимірювання в якості одного із контактів. Другим контактом виступала плівка заліза, напорошена на ситалову підкладинку. Аналогічно до 4-х точкового методу опір системи вимірювався безпосередньо на тунельному переході. Різниця потенціалів між контактами формувалась генератором знакозмінних трикутних імпульсів. Сигнал фіксувався цифровим осцилографом. Для забезпечення руху зонда в нанометровому діапазоні було модифіковано блок управління УПМ-11. Це дозволило на кілька порядків зменшити крок переміщення зонду. Розроблена методика дозволяла збільшувати площу контакту тунельної системи, змінюючи діяметер вістря зонда. Віддослідження електричних властивостей повідно, системи Fe/MgO/Fe в залежності від площі контакту проводились на одному зразку. Для дослідження використовували три зонди з різним діяметром вістря: 70 мкм, 140 мкм і 250 мкм, відповідно площа контакту складала $S \approx 4.10^3$ мкм², 15.10^3 мкм², 50.10^3 мкм².

Досліджуваний зразок, складався з почергово напорошених на підкладинку з ситалу CT-2 шарів металу Fe (50 нм) та діелектрика MgO (10 нм). Напорошення шарів Fe та MgO проводили в установці ВУП-5М електронно-променевим розпорошенням відповідної мішені. Схему контакту наведено на рис. 1.

За допомогою блока управління УПМ-11 здійснювали через п'єзоелектричний актуатор поступове заглиблювання залізного зонда в шар MgO, що призводило до зміни товщини діелектрика. Реєстрація вольт-амперних характеристик системи проводилась на



Рис. 1. Схема дослідження контакту Fe/MgO/Fe. Fig. 1. Scheme of study of the Fe/MgO/Fe contact.

кожному кроці зміни товщини діелектрика, яку визначали за напругою діелектричного пробою. Використання зондів з різною площею вістря дозволило дослідити вплив площі контакту на електричні властивості системи Fe/MgO/Fe.

3. РЕЗУЛЬТАТИ І ОБГОВОРЕННЯ

Як відомо, тунельний струм має нелінійну залежність від напруги, а диференційна провідність має параболічний характер за винятком невеликого зміщення [12]. Серія одержаних експериментальних вольт-амперних характеристик та диференційної провідності тришарової системи Fe/MgO/Fe-зонд представлена для різних товщин діелектрика (рис. 2).

Незначна несиметричність вольт-амперних характеристик і диференційної провідности за зміни полярности напруги пов'язана з відмінністю параметрів залізного зонда та тонкої плівки, які виступають в ролі верхнього та нижнього контактів системи Fe/MgO/Fe. Зі зменшенням товщини діелектрика MgO на один півперіод (0,21 нм) опір системи спадає в декілька разів, оскільки тунельний струм має експоненційну залежність від товщини діелектрика. В сканівній тунельній мікроскопії для оцінки величини тунельного струму можна використовувати спрощену формулу [13]:

$$I_{\rm T} = envS \exp\left[-4\pi \sqrt{\frac{2m(\varphi - eV)}{h^2}}d\right],\tag{1}$$



Рис. 2. Вплив товщини діелектрика в системі Fe/MgO/Fe на: вольт-амперні характеристики контакту (*a*) та його диференційну провідність (б).

Fig. 2. The influence of the dielectric thickness Fe/MgO/Fe system on: I-V characteristics of the contact (*a*), differential conductivity (δ).

де e — заряд електрона, n — концентрація електронів провідності в металі, m — маса електрона, v — швидкість електронів, S — площа контакту, d — товщина діелектрика, φ — висота потенціального бар'єру (половина ширини забороненої зони діелектрика), V — різниця потенціалів.

Тоді з формули (1):

$$\ln I_{\rm T} = \ln(envS) - 4\pi \sqrt{\frac{2m(\varphi - eV)}{h^2}}d, \qquad (2)$$

З отриманого рівняння (2), у випадку потенціального бар'єру $\phi = 3-4$ eB (що характерно для діелектрика MgO з шириною забороненої зони ~ 7,8 eB) логарифмічна залежність тунельного струму від напруги матиме лінійний характер за напруги зміщення 0,3–1 B, що відповідає результатам експерименту (рис. 3, *a*).

Для кожної з експериментальних кривих (рисунок 3, *a*) визначається деякий коефіцієнт пропорційності η логарифмічної залежності $\ln I$ від напруги та початкове значення $\ln I_0$ (при $V \rightarrow 0$ В). Тоді можна одержати апроксимуючу залежність для побудови вольтамперної характеристики у вигляді:

$$I = \exp\left[\ln I_0 + \eta V\right],\tag{3}$$

що узгоджується з експериментальними вольт-амперними характеристиками (рис. 3, б).

Оскільки серію вольт-амперних характеристик (рисунок 2, *a*) одержано в одній точці контакту, то, з деяким наближенням, мож-



Рис. 3. Апроксимація експериментальних вольт-амперних характеристик: в напівлогарифмічних координатах (*a*), в лінійних координатах (б).

Fig. 3. Approximation of the experimental I-V characteristics: in semilogarithmic coordinates (*a*), in linear coordinates (δ).

на вважати, що параметри тунельної системи, які входять в формулу (1) та (2), є незмінними, окрім товщини діелектрика. Тоді, для одержаних кривих (рис. 3, a) коефіцієнт пропорційності η залежить лише від товщини діелектрика та має лінійну залежність, що описується рівнянням:

$$\eta = 15, 6 - 5, 71d, \tag{4}$$

де *d* — товщина діелектрика в нм.

З даного рівняння можливо розрахувати значення η для широкого діапазону товщин діелектрика. Підставивши отримані значення в рівняння (3), вдається побудувати серію вольт-амперних характеристик для досліджуваного контакту (рис. 4, *a*) та зміну опору системи Fe/MgO/Fe зі зміною товщини діелектрика (рис. 4, *б*).

Як видно з рисунку 4, б опір тунельної системи Fe/MgO/Fe має нелінійний характер від товщини діелектрика, що зростає в 3,32 рази зі зміною товщини на один півперіод ґратниці MgO (0,21 нм). Однак, якщо взяти характерні дані e, n, v, m, φ для системи Fe/MgO/Fe і підставити в формулу (1), то отримаємо емпіричну залежність:

$$I_{\rm T} = 6, 2 \cdot 10^5 \exp(-17, 4d). \tag{5}$$

За такої залежності опір системи має зростати в 38,6 рази зі зміною товщини на один півперіод ґратниці MgO (0,21 нм). Виявлена невідповідність може бути пов'язана з неврахованими параметрами, що визначають прозорість потенціального бар'єра в системі ме-



Рис. 4. Розраховані для системи Fe/MgO/Fe: вольт-амперні характеристики(*a*), залежність опору від товщини діелектрика за прикладеної напруги 1 В.

Fig. 4. Calculated for the Fe/MgO/Fe system: I-V characteristics (a), the resistance dependence vs. the dielectric thickness at the applied voltage of 1 V (6).

тал-діелектрик-метал, що не враховані в формулах (1), (5).

Щодо досліджень впливу площі контакту S на тунельний струм I, то за формулою (1) вона повинна мати лінійний характер за однієї товщини діелектрика. При збільшенні S зростає область, крізь яку електрони можуть тунелювати і, відповідно, зростає величина I зі збереженням величини густини струму. На рисунку 5, a представлені експериментальні вольт-амперні характеристики, отримані за різної площі контакту та однієї товщини діелектрика (d = 2, 6 нм).

Незначна відмінність коефіцієнтів пропорційності η логарифмічної залежності струму $\ln I$ від напруги (рис. 5, δ) може бути пов'язана з різними місцями контакту залізного зонду з поверхнею діелектрика. Екстраполюючи коефіцієнт η вдається визначити значення $\ln I_0$ для кожної з експериментальних кривих. Зі співставлення формул (2) і (3) I_0 повинна мати лінійну залежність від площі контакту (рис. 6, a). Визначивши параметри залежності, можна побудувати розрахункові вольт-амперні криві для системи Fe/MgO/Fe за різної площі контакту (рис. 6, δ).

Для апроксимації вольт-амперних характеристик використовувалась спрощена формула, що є коректною за напруги більше 0,3 В, а для меншого діапазону напруги необхідно використовувати іншу апроксимуючу функцію, наприклад, [10]. Як видно з рисунку 5, б коефіцієнт нахилу η зменшується зі збільшенням площі контакту, що означає наближення до лінійної залежності струму від напруги. В експерименті збільшення площі контакту може призводити до збільшення впливу: дефектів, домішок, нерівномірності товщини діелектрика на характер провідності системи. Внаслідок цього зро-



Рис. 5. Електричні властивості системи Fe/MgO/Fe за різної площі контакту: вольт-амперні характеристики (*a*), напівлогарифмічна залежність струму від напруги (б).

Fig. 5. Electrical properties of Fe/MgO/Fe system by different contact areas: I-V characteristics (a), semi-logarithmic I-V characteristics (6).

стає відхилення експериментальних результатів від лінійної залежності в напівлогарифмічних координатах. Це, в свою чергу, ускладнює визначення параметрів для апроксимації вольтамперних характеристик.

Важливо зазначити, що для отриманих вольт-амперних характеристик визначалась гранична напруга, за якої зберігається тунельний характер провідності. При перевищені граничного значення спостерігається електричний пробій діелектрика, коли ізолятор втрачає діелектричні властивості і провідність стає омічною. В тунельних системах це приводить до різкого зменшення опору. За напругою діелектричного пробою можливо визначити товщину діелектрика за формулою:

$$d = U / E, \tag{6}$$

де *U* — напруга діелектричного пробою, *E* — діелектрична міцність.

Шляхом поступового підвищення напруги трикутного сигналу визначалась напруга пробою для кожної з кривих вольт-амперних характеристик (рис. 7, *a*) в різних місцях контакту з діелектриком.

Для визначення діелектричної міцности системи Fe/MgO/Fe залізний зонд приводився в контакт з діелектриком та поступово збільшувалась прикладена напруга. Визначено, що за напруги 6,2 В струм різко зростає. Знаючи товщину напорошеного шару діелектрика (d = 10 нм) та напругу діелектричного пробою (U = 6,2 В) розраховано діелектричну міцність досліджуваної системи Fe/MgO/Fe



Рис. 6. Залежність I_0 від площі контакту(*a*), вольт-амперні характеристики системи Fe/MgO/Fe за товщини діелектрика d = 2,6 нм та різної площі контакту (*б*).

Fig. 6. Dependence of I_0 vs. contact area (a), I-V characteristics of Fe/MgO/Fe system for dielectric thickness d = 2.6 nm and different contact area (δ).



Рис. 7. Вольт-амперні характеристики з граничною напругою (*a*), залежності діелектричної міцности MgO від товщини (б).

Fig. 7. I-V characteristics with the limit voltage (a), dielectric strength of MgO by thickness (δ).

(E = 6,2 MB/см). Оскільки розрахована діелектрична міцність відповідає літературними даними для системи FeCoB/MgO/FeCoB [14], то даний підхід є коректним для визначення товщини діелектрика.

Всі отримані результати напруги діелектричного пробою в залежності від товщини діелектрика показано на рис. 7, δ з врахуванням розкиду значень. З літератури відомо [15], що діелектрична міцність не є константою в нанорозмірній області і за малих товщин діелектрика зростає, досягаючи максимуму, та починає спадати. Немонотонність діелектричної міцности від товщини діелектрика (рис. 7, δ) може бути проявом пластичних властивостей матеріялу з утворенням структурних дефектів в результаті деформації шару MgO залізним зондом. Це також пояснює розкид значень діелектричної міцности для однієї товщини діелектрика отриманих в різних місцях контакту.

4. ВИСНОВКИ

Використання керованого зонда замість одного з металевих шарів у вивченні електричних характеристик тришарової тонкоплівкової системи дозволило провести унікальні дослідження властивостей тунельного контакту Fe/MgO/Fe за зміни товщини діелектрика. Аналіза та апроксимація експериментальних вольт-амперних характеристик контакту Fe/MgO/Fe дали можливість передбачувати і розраховувати вольт-амперні характеристики в широкому діапазоні товщин діелектрика та площі контакту. Встановлено, що опір системи Fe/MgO/Fe зростає приблизно в 3 рази при збільшенні товщини MgO на 0,21 нм, що не відповідає розрахунковим оцінкам зміни опору на порядок. Дана невідповідність вказує на необхідність врахування додаткових параметрів діелектрика окрім його товщини при розрахунку прозорості тунельного бар'єру. Виявлена немонотонна залежність діелектричної міцности MgO від товщини, що пояснюється можливістю впливу структурних змін у шарі діелектрика із заглибленням в нього залізного зонда. Розроблена і апробована в роботі унікальна методика стане корисною для вивчення електрофізичних властивостей тунельних контактів і в інших системах, що використовуються, зокрема, для виготовлення комірок пам'яті MRAM.

Роботу виконано за підтримки НАН України в рамках держбюджетної теми «Нерівноважні транспортні явища у матеріалах із шаруватою структурою» (0122U002366) та, частково, «Вплив товщини діелектрика та площі контакту на електричні властивості системи Fe/MgO/Fe» (0121U111996).

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА—REFERENCES

- 1. C. J. Lin, S. H. Kang, Y. J. Wang, K. Lee, X. Zhu, W. C. Chen, X. Li, W. N. Hsu, Y. C. Kao, M. T. Liu, W. C. Chen, Yi Ching Lin, M. Nowak, N. Yu, and L. Tran, *IEEE Int. Electron Devices*, 1 (2009).
- S. W. Chung, T. Kishi, J. W. Park, M. Yoshikawa, K. S. Park, T. Nagase, K. Sunouchi, H. Kanaya, G. C. Kim, K. Noma, M. S. Lee, A. Yamamoto, K. M. Rho, K. Tsuchida, S. J. Chung, J. Y. Yi, H. S. Kim, Y. S. Chun, H. Oyamatsu, and S. J. Hong, *IEEE Int. Electron Devices*, 27.1.1 (2016).
- 3. H. Noguchi, K. Ikegami, K. Kushida, K. Abe, S. Itai, S. Takaya, N. Shimomura, J. Ito, A. Kawasumi, H. Hara, and S. Fujita, *IEEE Int. Solid-State Circuits Conf.*, 1 (2015).
- 4. Y. D. Chih, Y. C. Shih, C. F. Lee, Y. A. Chang, P. H. Lee, H. J. Lin, Y. L. Chen, C. P. Lo, M. C. Shih, K. H. Shen, H. Chuang, and T. Y. J. Chang, *IEEE Int. Solid-State Circuits Conf.*, 222 (2020).
- S. Yuasa, A. Fukushima, K. Yakushiji, T. Nozaki, M. Konoto, H. Maehara, H. Kubota, T. Taniguchi, H. Arai, H. Imamura, K. Ando, Y. Shiota, F. Bonell, Y. Suzuki, N. Shimomura, E. Kitagawa, J. Ito, S. Fujita, K. Abe, K. Nomura, H. Noguchi, and H. Yoda, *IEEE Int. Electron Devices*, 3.1.1 (2013).
- 6. K. C. Chun, H. Zhao, J. D. Harms, T. H. Kim, J. P. Wang, and C. H. Kim, *IEEE* Int. Solid-State Circuits Conf., 48, No. 2: 598 (2013).
- W. Zhao, X. Zhao, B. Zhang, K. Cao, L. Wang, W. Kang, Q. Shi, M. Wang, Y. Zhang, Y. Wang, S. Peng, J. O. Klein, L. A. De Barros Naviner, and D. Ravelosona, *Mater.*, 9, Iss. 1: 41 (2016).
- 8. V. Burlakov, O. Filatov, and O. Pogorelov, *phys. status solidi* (b), **258**, Iss. 4: 2000502 (2020).
- 9. D. V. Dimitrov, Zh. Gao, X. Wang, W. Jung, X. Lou, and O. G. Heinonen, *Appl. Phys. Lett.*, **94**: 123110 (2009).

- 10. J. G. Simmons, J. Appl. Phys., 34: 1793 (1963).
- 11. B. Koslowski, C. Dietrich, A. Tschetschetkin, and P. Ziemann, *Phys. Rev. B*, **75**: 035421 (2007).
- 12. R. Lavrijsen, *MgO Based Magnetic Tunnel Junctions* (Eindhoven: Eindhoven University of Technology: 2006).
- 13. S. D. Karpukhin, J. A. Bykov, M. K. Boychenko, and V. O. Cheptsov, *Skaniruyushchaya Tunnel'naya Mikroskopiya. Apparatura, Printsip Raboty, Primenenie* [Scanning Tunnelling Microscopy. Equipment, Principle of Operation, Application] (Moscow: MGTU imeni N.J. Baumana: 2001) (in Russian).
- 14. A. A. Khan, J. Schmalhorst, A. Thomas, O. Schebaum, and G. Reiss, *J. Appl. Phys.*, **103**: 123705 (2008).
- 15. I. Yanagi, K. Fujisaki, H. Hamamura, and K. Takeda, *J. Appl. Phys.*, **121**: 045301 (2017).

168