

Осцилляции напряжения при эффекте переключения в режиме токовой моды в тонких слоях халькогенидов системы Ge-Sb-Te

© С.А. Фефелов⁺, Л.П. Казакова^{+*}, Д. Арсова[‡], С.А. Козюхин[#], К.Д. Цэндин^{+•}, О.Ю. Приходько[°]

⁺ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

^{*} Санкт-Петербургский государственный лесотехнический университет им. С.М. Кирова,
194021 Санкт-Петербург, Россия

[‡] Институт физики твердого тела Болгарской академии наук,
1784 София, Болгария

[#] Институт общей и неорганической химии им. Н.С. Курнакова Российской академии наук,
119991 Москва, Россия

[•] Санкт-Петербургский государственный политехнический университет,
195251 Санкт-Петербург, Россия

[°] Научно-исследовательский институт экспериментальной и теоретической физики,
Казахский национальный университет им. Аль-Фараби,
050040 Алматы, Казахстан

E-mail: s.fefelov@list.ru

(Получена 14 декабря 2015 г. Принята к печати 22 декабря 2015 г.)

Проведены исследования вольт-амперных характеристик, полученных на слоях халькогенидных стеклообразных полупроводников системы Ge-Sb-Te в режиме генератора тока. Обнаружена область неустойчивости — колебания проводимости, наблюдаемые при эффекте переключения в условиях задаваемого по величине тока. Детально изучены основные параметры, характеризующие эти колебания, и условия их возникновения. Анализ полученных данных показал, что для объяснения колебаний в области неустойчивости необходимо учитывать увеличение плотности тока и процесс теплообмена между шнуром тока, возникающим в пленке при переключении, и окружающей средой.

1. Введение

В настоящее время производителями энергонезависимой памяти большое внимание уделяется разработке ячеек памяти на материалах, способных изменять фазовое состояние под воздействием электрического импульса. Такой тип памяти получил название фазовой памяти (phase change memory, PCM). Одними из основных материалов для наблюдения фазовой памяти являются халькогенидные стеклообразные полупроводники. В связи с этим важно выяснить основные механизмы, приводящие к переходу слоев халькогенидных стеклообразных полупроводников (ХСП) из высокоомного (стеклообразного) состояния в низкоомное (кристаллическое) и формированию состояния с памятью. С целью выяснения этих механизмов в данной работе было проведено исследование вольт-амперных характеристик (ВАХ) на слоях ХСП системы Ge-Sb-Te, которая является перспективной для создания ячеек фазовой памяти.

Основное внимание в данной работе было сконцентрировано на исследовании колебаний проводимости, возникающих при эффекте переключения в пленках халькогенидов системы Ge-Sb-Te в условиях протекания постоянного по величине тока.

2. Образцы и методика эксперимента

Образцы для измерений представляли собой тонкопленочные структуры типа „сэндвич“ из ХСП составов

Ge₂Sb₂Te₅, Ge₁₅Sb₁₅Te₇₀ и Ge₁₅Sb₅Te₈₀. Они изготавливались методом термического напыления на подложки из стекла с проводящим покрытием из золота, которое служило нижним электродом. Верхний электрод — прижимной, точечный из золота, площадь электрода составляла $\sim 10^{-4}$ см² [1]. Перемещение этого электрода по поверхности напыленной пленки позволяло выполнять измерения электрических параметров для различных точек поверхности, что равносильно наличию большого количества образцов. Таким образом был получен большой статистический материал.

Для выявления уровней тока, при которых включаются различные физические механизмы, приводящие к структурным изменениям в материале, использовалась измерительная цепь с генератором тока [2,3]. При этом формировался импульс тока I треугольной формы через образец (рис. 1, кривая I). Параметры формируемого импульса тока — длительность фронта (t_1) и длительность спада импульса (t_2) — были фиксированы и равны $t_1 = t_2 = 1$ мс. Ток в импульсе изменяется от $I = 0$ до $I = I_{\max}$. Максимальное значение тока I_{\max} устанавливалось для каждого импульса равным одному из значений: 6.5, 100, 200, 565, 1200, 1900, 3700, 8200 мкА. На образце регистрировалось падение напряжения U , величина которого определена сопротивлением образца. Начальное сопротивление (R_0) образцов в слабом поле (омическая область) определялось с помощью импульса с $I_{\max} = 6.5$ мкА. В некоторых случаях формировалась плоская вершина импульса тока на уровне I_{\max} длитель-

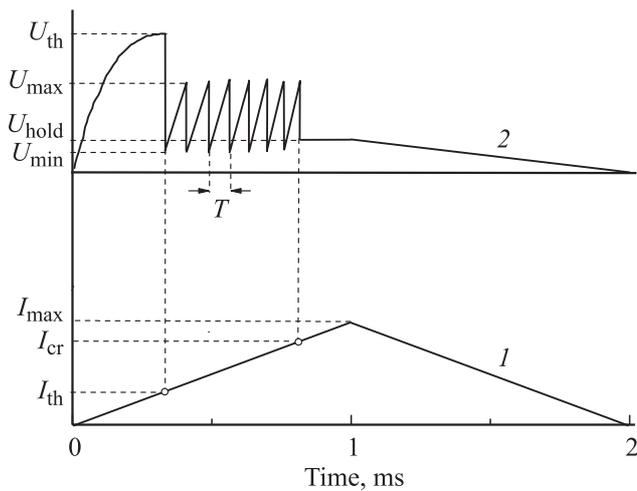


Рис. 1. Схематическое изображение осциллограмм тока (I) и напряжения (U) на образце.

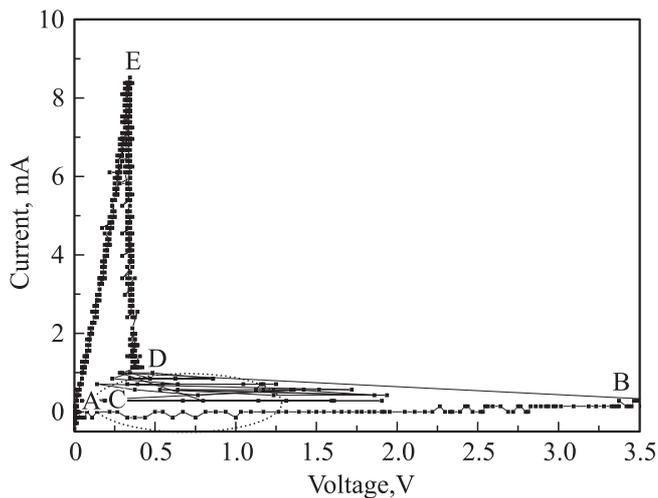


Рис. 2. ВАХ второго типа, полученная на образце $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{15}\text{Te}_{70}$ ($L = 700$ нм) с использованием генератора тока.

ностью 300 мкс (импульс трапецидальной формы). Так как длительности фронта t_1 и спада t_2 одинаковы для всех импульсов независимо от установленного максимального значения тока I_{\max} , то скорость нарастания тока (I_{\max}/t_1) зависела от его максимального значения.

На рис. 1 приведена типичная форма напряжения на образце, наблюдаемая при переключении (кривая 2), которая характеризуется следующими параметрами: напряжение переключения U_{th} — соответствует переходу из высокоомного состояния в низкоомное; напряжение поддержки U_{hold} — соответствует участку, на котором происходит формирование состояния с памятью.

Широкий диапазон значений тока I_{\max} позволил провести подробное исследование области колебаний, заключенной между напряжениями U_{th} и U_{hold} (рис. 1, кривая 2).

Основными параметрами, характеризующими эти колебания, были период T , минимальное и максимальное значения напряжений — U_{\min} и U_{\max} соответственно, а также критическое значение тока I_{cr} (рис. 1), ограничивающее область существования колебаний: при $I > I_{\text{cr}}$ колебания исчезают (срываются), при $I < I_{\text{cr}}$ колебания возможны.

На основании данных, полученных из осциллограмм напряжения на образце, строились вольт-амперные характеристики (ВАХ), типичный вид которых представлен на рис. 2.

3. Экспериментальные результаты

Исследования показали, что полученные вольт-амперные характеристики можно свести к двум основным типам: первый — при переключении из высокоомного в низкоомное состояние не наблюдалась область неустойчивости; второй — после переключения наблюдается неустойчивость, характерным проявлением которой является наличие колебаний напряжения на образце. Отметим, что ВАХ второго типа составляли $\sim 30\%$ для состава $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ и $\sim 80\%$ для $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{15}\text{Te}_{70}$. Общие особенности ВАХ обоих типов обсуждались нами в работах [2–5]. Установленный разброс значений сопротивления R_0 и напряжения переключения U_{th} объяснялся в этих работах наличием фазовой неоднородности пленки по толщине.

Следует подчеркнуть, что напряжение на образце определяется током, задаваемым внешним источником и сопротивлением пленки, т. е. в данном случае колебания напряжения на образце вызваны колебаниями проводимости в зоне протекания тока.

Как видно из рис. 2, на вольт-амперной характеристике можно выделить 5 областей.

Область А–В — высокоомное состояние образца; в области В–С происходит переключение в низкоомное состояние. Отметим, что при измерениях был установлен значительный разброс значений R_0 и U_{th} . Так, для пленок состава $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{15}\text{Te}_{70}$ (толщина $L = 700$ нм) $R_0 = 150\text{--}400$ кОм и $U_{\text{th}} = 4\text{--}9$ В. Для пленок состава $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ ($L = 160$ нм) $R_0 = 150\text{--}550$ кОм, $U_{\text{th}} = 2\text{--}7$ В.

Область С–D — область неустойчивости, т. е. область колебаний (осцилляций) напряжения в интервале напряжений $U_{\min}\text{--}U_{\max}$ со стабильным периодом. Осциллограмма этих колебаний представлена на рис. 3. В области D–E при $I > I_{\text{cr}}$ (I_{cr} — критическое значение тока — см. рис. 1) колебания исчезают (срываются) и напряжение стабилизируется на уровне напряжения поддержки U_{hold} . Значения U_{hold} были практически одинаковыми для пленок определенной толщины и составляли ~ 500 мВ для пленок $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{15}\text{Te}_{70}$ ($L = 700$ нм) и ~ 400 мВ для пленок состава $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ ($L = 160$ нм).

В области E–A при уменьшении тока I зависимость тока от напряжения носит омический характер. Низ-

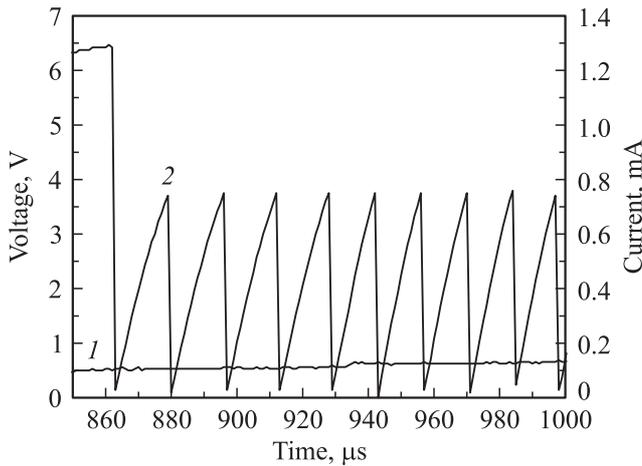


Рис. 3. Оциллограммы тока (*I*) и напряжения (*2*) на образце $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{15}\text{Te}_{70}$ ($L = 700$ нм) в области неустойчивости.

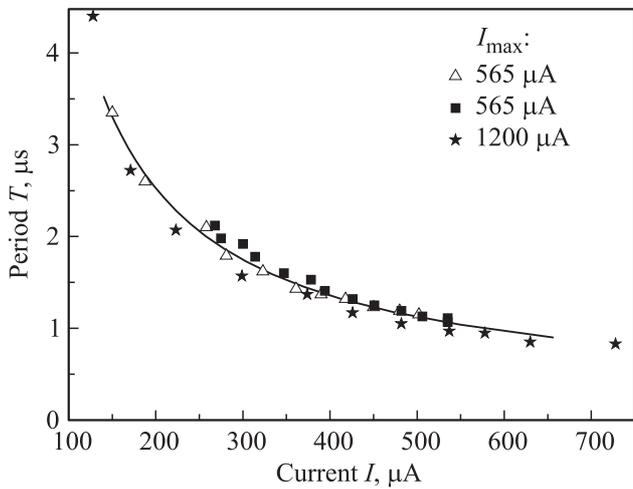


Рис. 4. Зависимость периода колебаний напряжения от тока при его нарастании/убывании для различных максимальных значений I_{max} .

коомное состояние с памятью сохраняется, при этом сопротивление образца уменьшается в $10^3 - 10^4$ раз по сравнению с R_0 ,

На рис. 2 колебания выглядят как нерегулярные и хаотические. Это связано с тем обстоятельством, что частота дискретизации по времени используемой аппаратуры незначительно превышала частоту колебаний напряжения на образце, поэтому форма колебаний искажена. Размер файла данных, записываемый аппаратурой, ограничен, поэтому запись полного сигнала для построения ВАХ была возможна только с низкой частотой оцифровки, что и привело к искажениям формы на ВАХ. Повышение частоты опроса АЦП увеличивает разрешение, но ограничивает длительность фиксируемого фрагмента сигнала по времени. На рис. 3 приведена полученная в режиме высокого разрешения оциллограмма колебаний в области неустойчивости. Видно, что форма колебаний пилообразная.

Как уже говорилось выше, колебания характеризуются периодом T и амплитудой U_{max} . Исследования показали, что период колебаний T определяется током, протекающим через образец, а также толщиной пленки. При этом величина U_{max} для конкретного образца, практически не изменяется при изменении тока I .

Поскольку подаваемый на образец импульс тока имеет треугольную форму, при исследовании регистрировались осцилляции напряжения, соответствующие фронту и спаду подаваемого тока. Полученные на фронте и спаде значения периода осцилляций для различающихся максимальным значением импульсов тока I_{max} приведены на рис. 4. Как видно из рисунка, для импульсов с различной скоростью нарастания тока (I_{max}/t_1) при одинаковых значениях I и условии сохранения амплитуды колебаний U_{max} периоды T практически совпадали.

Отметим, что при измерении U_{max} на 10 образцах (в 10 точках) пленки состава $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{15}\text{Te}_{70}$ ($L = 700$ нм) наблюдался разброс значений в интервале от 2.5 до 4.2 В.

Для этих образцов зависимость периода колебаний от тока показана на рис. 5. Как видно из рисунка, значения периода T , полученные для разных точек пленки, имеют одинаковый характер зависимости от тока I (период уменьшался с увеличением тока). Экспериментально установленный в пленках $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{15}\text{Te}_{70}$ ($L = 700$ нм) разброс значений U_{max} может быть связан с наличием в пленке неоднородностей.

Следует отметить, что при подаче на образец тока трапецидальной формы фиксировалось максимальное значение тока I_{max} на временном интервале 300 мкс. Для этого интервала период колебаний в области неустойчивости был стабилен.

Таким образом, из экспериментальных данных следует, что для конкретного состава и толщины пленки период колебаний T достаточно стабильная величина и определяется током канала проводимости.

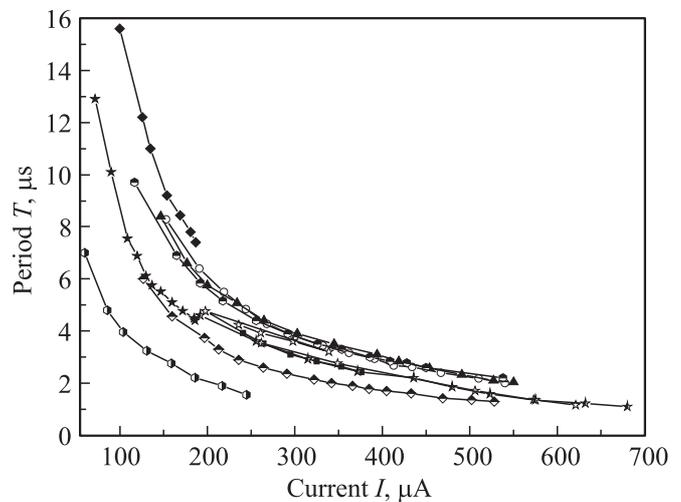


Рис. 5. Зависимость периода колебаний напряжения от тока для 10 образцов (10 точек) на пленке $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{15}\text{Te}_{70}$ ($L = 700$ нм).

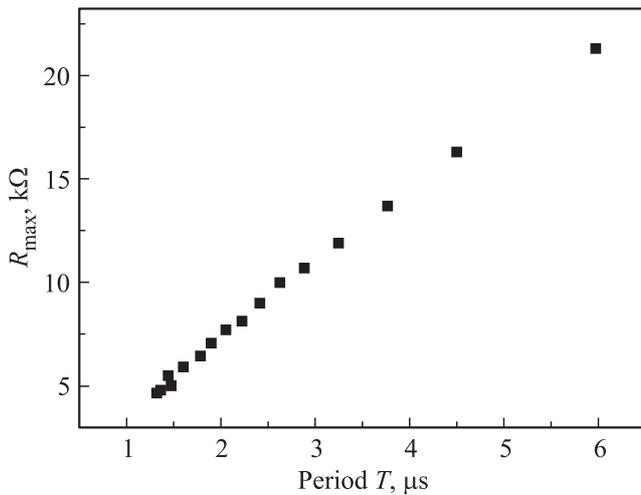


Рис. 6. Зависимость сопротивления R_{max} от периода колебаний T на образце $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{15}\text{Te}_{70}$ ($L = 700 \text{ нм}$).

На рис. 6 представлена зависимость от периода сопротивления R_{max} , значение которого рассчитывалось по формуле $R_{\text{max}} = U_{\text{max}}/I$.

4. Обсуждение результатов

В настоящее время единого мнения о физической природе эффекта переключения и формирования состояния с памятью нет. В цикле работ [6–9] было показано, что эффект переключения можно объяснить появлением S -образной ВАХ и шнурованием тока в рамках электронно-теплового механизма, учитывающего многофононную туннельную ионизацию U^- -центров. При этом следующий за эффектом переключения процесс формирования состояния с памятью (эффект памяти) связывался с кристаллизацией в объеме разогретого током шнура.

В настоящей работе мы рассмотрим более детально характеристики колебаний при наличии S -образной ВАХ и их зависимость от тока в образце. Как уже говорилось выше, колебания в области неустойчивости представляют собой последовательность переключений, характеризуемых амплитудой U_{max} и периодом T на фоне монотонного изменения тока от 0 до I_{max} .

Рассмотрим отдельно взятый временной интервал T , в течение которого на образце происходит изменение напряжения от максимального значения U_{max} до минимального U_{min} , а затем напряжение возрастает от U_{min} до U_{max} . Если учесть, что ток в образце на временном интервале T меняется слабо, объяснить возрастание напряжения на образце от U_{min} до U_{max} возможно только возрастанием сопротивления шнура тока на этом интервале. В первом приближении сопротивление шнура определяется либо его размерами, либо его температурой, либо комбинацией того и другого.

Логично предположить связь сопротивления шнура с его температурой. Тогда скорость восстановления высокого сопротивления в канале определяется параметрами теплообмена между шнуром тока и окружающей средой и характеризуется коэффициентом термической инерции λ [10]. Если θ — температура окружающей среды, t_{max} и t_{min} — максимальная и минимальная температуры шнура тока, соответствующие значениям U_{min} и U_{max} , то уравнение, определяющее связь между коэффициентом инерции λ и временем охлаждения шнура T , имеет вид

$$(t_{\text{min}} - \theta)/(t_{\text{max}} - \theta) = e^{-T/\lambda}.$$

Из уравнения следует, что

$$T = \lambda \ln(t_{\text{max}} - \theta)/(t_{\text{min}} - \theta).$$

В предположении, что $(t_{\text{max}} - \theta) = \text{const}$, уменьшение периода осцилляций T по мере нарастания тока, протекающего в образце, приведет к уменьшению сопротивления шнура (R_{max}) и, следовательно, к возрастанию минимальной температуры t_{min} . Косвенным подтверждением этой связи может служить зависимость R_{max} от T , представленная на рис. 6.

Уменьшение периода T по мере нарастания тока, протекающего в образце, имеет достаточно простое объяснение. Амплитуда осцилляций, как было установлено в эксперименте, величина постоянная ($U_{\text{max}} = \text{const}$). Изменение сопротивления шнура тока по мере остывания, на начальном участке экспоненты практически линейно и определяется коэффициентом термической инерции λ . Таким образом, скорость увеличения сопротивления пленки и, следовательно, возрастания напряжения до уровня U_{max} будет тем больше, чем больше величина тока для данного периода осцилляций.

Согласно закону Джоуля–Ленца, в шнур тока поступает тепло $Q_1 \sim I^2 L/\sigma S$, где σ — электропроводность, S — сечение шнура тока. При переключении (переход от U_{max} до U_{min}) ток локализуется в канале малого сечения шнура тока S . Приток тепла Q_1 в этот момент за счет увеличения плотности тока возрастает и становится больше отводимой энергии Q_2 ($Q_1 > Q_2$, $Q_2 > 0$), т. е. на интервале $U_{\text{max}} - U_{\text{min}}$ происходит быстрое уменьшение сопротивления и нагрев шнура.

Затем на интервале от $U_{\text{min}} - U_{\text{max}}$ вследствие $Q_1 < Q_2$ происходит охлаждение и наблюдается возрастание сопротивления шнура, т. е. уменьшение температуры от t_{max} до t_{min} .

Так как протекающий ток практически одинаков в обоих случаях, объяснить разницу подводимой энергии можно, предположив, что сечение шнура уменьшается в момент переключения, при этом плотность тока возрастает, что приводит к повышенному тепловыделению. Уменьшение сечения происходит вследствие локального электрического пробоя между электродами в момент, когда напряжение достигает значения U_{max} , необходимого для создания пробивной напряженности электрического поля.

Поскольку с ростом тока период T уменьшается, т.е. сокращается время остывания, количество отводимого тепла Q_2 будет уменьшаться. Таким образом, постепенное увеличение температуры шнура приведет к исчезновению (срыву) колебаний при „критическом“ значении тока I_{cr} .

Отметим, что при $I = I_{cr}$ температура канала также приближается к критическому значению, при котором происходит фазовая трансформация материала пленки.

5. Заключение

Проведение в данной работе исследований в режиме генератора тока позволило детально исследовать ВАХ и процессы, происходящие при переключении и формировании состояния с памятью в наноразмерных пленках халькогенидов системы Ge—Sb—Te.

Была обнаружена область неустойчивости — колебания проводимости, наблюдаемые при эффекте переключения в условиях протекания задаваемого по величине тока.

Было установлено, что для конкретного состава и толщины пленки период колебаний — достаточно стабильная величина и определяется током канала проводимости и величиной напряжения пробоя активной области. При увеличении тока через канал период уменьшался, амплитуда колебаний U_{max} практически не изменялась, значение пробивного напряжения U_{max} достигалось за меньшее время (T). При этом происходило уменьшение сопротивления остывающего канала R_{max} . Уменьшение сопротивления R_{max} свидетельствует о возрастании минимальной температуры в области протекания тока предшествующей стадии пробоя. Это обусловило постепенное увеличение температуры шнура, что и приводило к исчезновению (срыву) колебаний при „критическом“ значении тока I_{cr} . При $I = I_{cr}$ температура канала приближалась к критическому значению, при котором происходит фазовая трансформация материала „стекло—кристалл“.

Колебания температуры шнура и его сопротивления происходят вследствие уменьшения сечения шнура тока в момент переключения, при этом плотность тока возрастает и приток тепла становится больше отводимой энергии. Затем на интервале $U_{min} - U_{max}$ происходит охлаждение и возрастание сопротивления шнура.

Полученные данные позволяют интерпретировать колебания температуры шнура и его сопротивления как следствие колебаний теплообмена между шнуром тока и окружающей средой. Поскольку протекающий ток при нагреве ($Q_1 - Q_2 > 0$) и при остывании ($Q_1 - Q_2 < 0$) практически одинаков, объяснить разницу в подводимой энергии можно, только предположив уменьшение сечения шнура в момент переключения, которое приводит к возрастанию плотности тока.

Работа поддержана программой фундаментальных исследований президиума РАН, проектом Министерства образования и науки Казахстана № 4607/GF4 и проектом РФФИ № 13-03-00314.

Список литературы

- [1] Э.А. Лебедев, С.А. Козюхин, Н.Н. Константинова, Л.П. Казакова. ФТП, **43**, 1383 (2009).
- [2] С.А. Фефелов, Л.П. Казакова, С.А. Яковлев, С.А. Козюхин, К.Д. Цэндин. *Тр. Междунар. симп. МФФП-1 „Физика межфазных границ и фазовые переходы“* (Ростов-на-Дону, Россия, 2011) с. 155.
- [3] С.А. Фефелов, Л.П. Казакова, С.А. Козюхин, К.Д. Цэндин, Д. Арсова, В. Памукчиева. ЖТФ, **84**, 80 (2014).
- [4] N. Almasov, N. Bogoslovskiy, N. Korobova, S. Kozyukhin, S. Fefelov, L. Kazakova, S. Jakovlev, K. Tsendin, N. Guseinov. *J. Non-Cryst. Sol.*, **358**, 3299 (2012).
- [5] V. Dzhurkov, S. Fefelov, D. Arsova, D. Nesheva, L. Kazakova. *J. Physics: Conf. Ser.*, **558**, 012046 (2014).
- [6] Э.А. Лебедев, К.Д. Цэндин. В сб.: *Электронные явления в халькогенидных стеклообразных полупроводниках*, под ред. К.Д. Цэндина (СПб., Наука, 1996) с. 234.
- [7] K.D. Tsendin. *Phys. Status Solidi B*, **249**, 1962 (2012).
- [8] Н.А. Богословский, К.Д. Цэндин. ФТП, **46**, 577 (2012).
- [9] N.A. Bogoslovskiy, K.D. Tsendin. *J. Optoelectronics Adv. Mater.*, **11–12**, 1423 (2011).
- [10] М.С. Стернзат. *Метеорологические приборы и измерения* (Л., Гидрометеиздат, 1978) с. 22.

Редактор Л.В. Шаронова

The voltage oscillations with switching effect in thin Ge—Sb—Te films in the constant current regime mode

S.A. Fefelov⁺, L.P. Kazakova^{+*}, D. Arsova[‡], S.A. Kozyukhin[#], K.D. Tsendin^{+•}, O.Yu. Prikhodko[°]

⁺ Ioffe Institute,
194021 St. Petersburg, Russia

^{*} SPb SLTA,
194021 St. Petersburg, Russia

[‡] Institute of Solid State Physics,
Bulgarian Academy of Sciences,
1784 Sofia, Bulgaria

[#] Kurnakov Institute of General and Inorganic
Chemistry, Russian Academy of Sciences,
119991 Moscow, Russia

[•] St. Petersburg State Polytechnical University,
195251 St. Petersburg, Russia

[°] Al-Farabi Kazakh National University,
050040 Almaty, Kazakhstan

Abstract The investigation of current–voltage characteristics for thin Ge—Sb—Te films in the constant current regime mode have been carried out. The oscillations of conductivity have been revealed for constant current regime mode. Detailed investigation showed that increase of the current density and heat balance between current filament and environment have to be taken into consideration for adequate explanation of the oscillations.