05.2;06.1;13.1 Формирование наноразмерных ферромагнитных филаментов Ni в пленках ZrO₂(Y)

© Д.А. Антонов, А.С. Новиков, Д.О. Филатов, А.В. Круглов, И.Н. Антонов, А.В. Здоровейщев, О.Н. Горшков

Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского, Нижний Новгород, Россия E-mail: antonov@phys.unn.ru

Поступило в Редакцию 21 декабря 2020 г. В окончательной редакции 7 марта 2021 г. Принято к публикации 9 марта 2021 г.

> В тонких пленках $ZrO_2(Y)/Ni$ с помощью зонда атомно-силового микроскопа сформированы проводящие ферромагнитные филаменты нанометровых размеров, состоящие из атомов Ni. Контакт зонда к таким пленкам (виртуальное составное мемристорное устройство) демонстрировал резистивное переключение биполярного типа, связанное с разрушением и восстановлением Ni-филаментов в пленке $ZrO_2(Y)$. Область выхода проводящего филамента на поверхность пленки $ZrO_2(Y)$ проявлялась на магнитно-силовом изображении как однодоменная ферромагнитная частица.

> Ключевые слова: мемристор, резистивное переключение, атомно-силовая микроскопия, ферромагнитные филаменты.

DOI: 10.21883/PJTF.2021.11.51004.18665

В последние годы появился повышенный интерес к возможности управления резистивным переключением (РП) в мемристорах путем совместного воздействия электрического и магнитного полей [1,2]. Данный подход обеспечивает повышенную функциональность мемристоров, позволяя за счет приложения внешнего магнитного поля изменять электросопротивление проводящего филамента в функциональном диэлектрическом слое мемристорной структуры (эффект магнетосопротивления) [3,4]. Другой подход заключается в формировании в функциональном диэлектрике филаментов, состоящих из атомов ферромагнитного материала (Fe, Co и др.) [5]. Данный подход позволяет управлять магнитными свойствами мемристора за счет приложения к структуре как магнитного, так и электрического поля. Один из способов его реализации — формирование по крайней мере одного из электродов мемристорной структуры из ферромагнитного металла [6]. В этом случае возможно формирование катионов металла (ферромагнитного материала) за счет электрохимической реакции анодного окисления на границе раздела ферромагнитного электрода с диэлектрической прослойкой с последующим формированием филаментов из катионов ферромагнитного материала в электрическом поле между электродами мемристорной структуры [7].

Цель настоящей работы — формирование отдельных ферромагнитных филаментов мемристорных структур на основе функциональных слоев ZrO₂(Y)/Ni.

Филаменты с нанометровыми латеральными размерами, содержащие атомы Ni, формировались в пленке ZrO₂(Y) при помощи зонда атомно-силового микроскопа (ACM), выполняющего функцию точечного подвижного прижимного верхнего электрода [8]. Пленки ZrO₂(Y) (~ 12 mol. % Y₂O₃) толщиной ~ 10 nm получались методом высокочастотного магнетронного осаждения на стандартных подложках TiN(25 nm)/Ti(25 nm)/SiO₂(500 nm)/Si(001) с предварительно осажденным на них слоем Ni толщиной ~ 10 nm. Формирование Ni-филаментов, а также исследование их электрических свойств проводилось при помощи ACM NT-MDT Solver Pro в контактном режиме с использованием ACM-зондов NT-MDT HA_HR_DCP с электропроводящим алмазоподобным покрытием (рис. 1). Исследование микромагнитных



Рис. 1. Схема формирования Ni-филамента в пленке $ZrO_2(Y)$ при помощи ACM-зонда при положительном напряжении на слое Ni относительно ACM-зонда (V_g). DLC — электропроводящее алмазоподобное покрытие.



Рис. 2. Вольт-амперные характеристики контактов ACM-зонда к поверхности структуры $ZrO_2(Y)/Ni/TiN/Ti/SiO_2/Si$ (*a*) и структуры $ZrO_2(Y)/TiN/Ti/SiO_2/Si$ (*b*), формирующих виртуальный мемристор. HRS — состояние с высоким сопротивлением, LRS — состояние с низким сопротивлением; шкала по току до 10 nA — линейная, по току 10–50 nA — логарифмическая; ограничение тока выше 50 nA связано с током насыщения усилителя.



Рис. 3. Морфология (*a*) и МСМ-контраст (*b*) поверхности структуры ZrO₂(Y)/Ni/TiN/Ti/SiO₂/Si после формирования трех проводящих филаментов из атомов Ni.

свойств сформированных филаментов проводилось методом магнитно-силовой микроскопии (МСМ), использовались зонды марки NT-MDT HA_FM_CoFe. Под "ферромагнитным филаментом" понимается проводящая нить, состоящая из атомов ферромагнитного материала (Ni), замыкающая Ni-слой и проводящий зонд ACM-микроскопа (рис. 1). Формирование Ni-филаментов проводилось путем подачи пилообразных импульсов электрического напряжения между ACM-зондом и слоем Ni (V_g) амплитудой ~ 8 V и длительностью 6 s. При этом контролировалась сила тока, протекающего через ACM-зонд, пленку ZrO₂(Y) и подслой Ni (I_t).

На рис. 2, *а* приведены типичные циклические вольт-амперные характеристики (BAX) контакта ACM-зонда к поверхности пленки ZrO₂(Y)/Ni, в которых

наблюдался гистерезис, характерный для биполярного РП. При этом после формовки наблюдались нелинейные ВАХ (рис. 2, *a*, циклическая ВАХ, замкнутая кривая *I*). Такой вид ВАХ обусловлен формированием проводящих филаментов, преимущественно состоящих из вакансий кислорода в $ZrO_2(Y)$, электронная проводимость по которым осуществляется по прыжковому механизму [9]. После нескольких циклов РП характер проводимости менялся: ВАХ мемристорной структуры в состоянии с низким сопротивлением (LRS) вблизи $V_g = 0$ приобрела омический характер (рис. 2, *a*, циклическая ВАХ, замкнутая кривая 2, сплошная линия). Подобный вид ВАХ характерен для прижимного контакта АСМ-зонда к металлам и типичен для мемристоров типа "проводящий мостик" (англ. conducting bridge) [10]. Резистивное переключение подобных устройств основано на разрушении и восстановлении проводимости филаментов, состоящих из атомов (катионов) металлов, в диэлектрической пленке в результате окислительно-восстановительных реакций (преимущественно в области интерфейсов металл/диэлектрик) под действием электрического поля [7]. При этом филаменты из вакансий кислорода в ZrO₂(Y) могут облегчать дрейф ионов Ni от слоя Ni, где они образуются за счет электрохимической реакции окисления, к АСМ-зонду (рис. 1) и таким образом способствовать формированию Ni-филаментов. Мы полагаем, что латеральные размеры формирующихся Ni-филаментов по порядку величины соответствуют размерам области контакта острия АСМ-зонда с поверхностью образца (латеральный размер < 10 nm [9]). Следует отметить, что на образце-спутнике ZrO2(Y)/TiN/Ti/SiO2/Si (без подслоя Ni) наблюдались только нелинейные циклические BAX (рис. 2, b), соответствующие формированию и разрушению филаментов из вакансий кислорода в ZrO₂(Y) (так называемые окислительно-восстановительные или RedOx-процессы, от англ. reduction-oxidation).

поверхности Морфология пленки $ZrO_2(Y)/Ni$ (рис. 3, a) в местах формирования проводящих филаментов демонстрирует образование плоских островков с высотами 1-1.5 nm и латеральными размерами 100-150 nm, что предположительно связано с выходом ионов Ni на поверхность пленки ZrO2(Y)/Ni в процессе формирования филамента. Исследование микромагнитных свойств таких филаментов методом МСМ показало, что область выхода проводящего филамента на поверхность пленки ZrO₂(Y) проявляется на МСМ-изображении (рис. 3, b) как однодоменная ферромагнитная частица [11]. Следует отметить, что на МСМ-изображениях образцов-спутников ZrO2(Y)/TiN/Ti/SiO2/Si без подслоя Ni магнитного контраста от сформированных проводящих филаментов не наблюдалось.

Таким образом, в работе экспериментально продемонстрирована возможность формирования при помощи ACM-зонда виртуального мемристора типа "проводящий мостик" на основе слоя функционального диэлектрика ZrO₂(Y)/Ni. Сформированные Ni-филаменты обладают ферромагнитными свойствами и проявляются на MCMизображениях как однодоменные частицы.

Благодарности

АСМ- и МСМ-исследования выполнены с использованием оборудования центра коллективного пользования — Научно-образовательного центра "Физика твердотельных наноструктур" Нижегородского государственного университета им. Н.И. Лобачевского. Авторы благодарят А.А. Фраермана и И.Ю. Пашенькина (Институт физики микроструктур РАН, Нижний Новгород) за полезную дискуссию.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований в рамках научного проекта № 20-02-00830.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- H.-J. Jang, O.A. Kirillov, O.D. Jurchescu, C.A. Richter, Appl. Phys. Lett., **100** (4), 43510 (2012). DOI: 10.1063/1.3679114
- [2] F. Wang, L. Li, L. Shi, H. Wu, L. Chua, J. Appl. Phys., 125 (5), 54504 (2019). DOI: 10.1063/1.5042281
- [3] L. Li, Y. Liu, J. Teng, S. Long, Q. Guo, M. Zhang, Y. Wu, G. Yu, Q. Liu, H. Lv, M. Liu, Nanoscale Res. Lett., 12, 210 (2017). DOI: 10.1186/s11671-017-1983-2
- [4] S. Otsuka, Y. Hamada, D. Ito, T. Shimizu, S. Shingubara, Jpn. J. Appl. Phys., 54 (5S), 05ED02 (2015).
 DOI: 10.7567/JJAP.54.05ED02
- [5] Z. Yang, Q. Zhan, X. Zhu, Y. Liu, H. Yang, B. Hu, J. Shang,
 L. Pan, B. Chen, R.-W. Li, Europhys. Lett., 108 (5), 58004 (2014). DOI: 10.1209/0295-5075/108/58004
- [6] S. Otsuka, Y. Hamada, T. Shimizu, S. Shingubara, Appl. Phys
 A, 118 (2), 613 (2015). DOI: 10.1007/s00339-014-8769-5
- [7] M. Lübben, I. Valov, Adv. Electron. Mater., 5 (9), 1800933 (2019). DOI: 10.1002/aelm.201800933
- [8] M. Lanza, Conductive atomic force microscopy: applications in nanomaterials (Wiley-VCH Verlag, Weinheim, 2017).
- [9] D.O. Filatov, D.A. Antonov, I.N. Antonov, A.P. Kasatkin,
 O.N. Gorshkov, J. Mater. Sci. Chem. Eng., 5 (1), 8 (2017).
 DOI: 10.4236/msce.2017.51002
- [10] S.H. Lee, X. Zhu, W.D. Lu, Nano Res., 13 (5), 1228 (2020).
 DOI: 10.1007/s12274-020-2616-0
- [11] D.V. Ovchinnikov, A.A. Bukharaev, AIP Conf. Proc., 696, 634 (2003). DOI: 10.1063/1.1639762