二層型 MoO_x/Al_2O_3 CBRAM 中の Cu 移動の TEM その場観察

In-situ TEM of Cu movement in MoO_x/Al_2O_3 double layer CBRAM

北大院情報 有田 正志，石川 竜介，福地 厚，高橋 庸夫

Hokkaido Univ., Masashi Arita, Ryusuke Ishikawa[1], Atsushi Tsurumaki-Fukuchi, Yasuo Takahashi

E-mail: arita@nano.ist.hokudai.ac.jp

【はじめに】

各種の抵抗変化型メモリ (ReRAM) が研究・開発されているが、その中で CBRAM の動作（書き込み：Set、消去：Reset）は Cu や Ag のフィラメント形成・破断によって生じるとされている。単層の絶縁スイッチ層を有する CBRAM に加えて、2 層絶縁層 CBRAM は良好な信頼性を示すとの報告もある [1]。本研究では、Cu 上部電極（TE）、TiN 下部電極（BE）に挟まれた MoO_x/Al_2O_3 構造の二層 CBRAM に対して TEM その場観察実験（in-situ TEM）を行い、デバイス中の Cu の移動、および Al_2O_3 層の役割について調べた。

【実験方法】

Cu/MoO_x/Al_2O_3/TiN の二層構造 CBRAM を、RF スパッタ法 (Ar または Ar+O_2) により SiO_2/Si または Si 基板上に製膜した。得られた多層膜試料を FIB 法により針状デバイスに加工し、TiN 下部電極接地の条件で in-situ TEM 観察した。実験には、電流制限用 FET を搭載した特殊 TEM/STM ホルダーを使用した。複数回の電圧印加によりデバイス抵抗値@0.5 V を 50 MΩ程度から 1 MΩ程度に減少させる初期化の後、CBRAM バイポーラ動作を行った。

【結果】

制限電流（I_{comp}）を 20 μA とした低電流動作の結果を Fig. 1 に示す。Set/Reset を伴う明瞭な電流電圧特性が得られた（Fig. 1a）。Set 前（A）と Set 後（B）の TEM 像を Fig. 1b に示す。Set 動作によって MoO_x 層の右下部分（Al_2O_3 との界面付近）が暗くなり、Cu TE の下部（MoO_x との界面付近）が明るくなっていることがわかる。これは Cu が TE から Fig. 1b の下方向に移動し、MoO_x/Al_2O_3 界面に溜まった事を示している。一方、Al_2O_3 層には明瞭な変化は見られなかった。微小な Cu フィラメント（CF）が予想される。Fig. 1b の領域 1～4 における TEM 像コントラストの時間経過を Fig. 1c に示す。Set 前の徐々に電流が増加している段階で MoO_x 層（領域 2, 3）のコントラストは暗くなり始めており、急激な Set スイッチ前に Cu 移動が開始することを示している。領域 3（MoO_x/Al_2O_3 界面付近）のコントラスト変化が飽和したときに電流の急増（Set 動作）が確認できる。MoO_x/Al_2O_3 界面の Cu 量が十分増加したタイミングで Al_2O_3 層内に Cu CF が形成されて Set 動作が生じると考えられる。一方、Reset 動作においては TEM 像に顕著なコントラスト変化は確認されなかった。Al_2O_3 層に形成された微小 CF の破断が生じているものと予想できる。ここではデータを示さないが、Al_2O_3 層中の Cu CF は I_{comp} を増加させた条件（例えば 60 μA）では確認されており、まず Cu が一旦 MoO_x/Al_2O_3 界面に堆積し、その後 Al_2O_3 層へと侵入して CF 形成することが観察された。Al_2O_3 の Cu 移動はスパッタ製膜 MoO_x よりも遅いと予想され、二層構造にすることによって Cu 移動が界面で制限され CF の局在化が生じるものと考えられる。二層 CBRAM における良好動作は、Cu CF 成長の界面による制限が寄与していると言える。

[1] D. Kumar *et al.*, Appl. Phys. Lett. **110**, 203102 (2017).

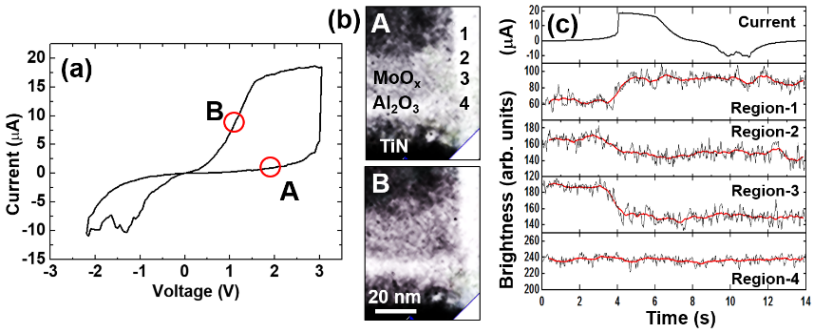

Fig. 1 (a) The switching curve. (b) In-situ TEM images. (c) Contrast transition of regions-1 (Cu TE), 2 (MoO_x top), 3 (MoO_x bottom) and 4 (Al_2O_3) compared with the current. Red: smoothing of 730 msec.

© 2021年 応用物理学会