



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	動的電子顕微鏡観察法による抵抗変化メモリの動作特性とナノ構造変化に関する研究 [論文内容及び審査の要旨]
Author(s)	武藤, 恵
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第14590号
Issue Date	2021-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/81402
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Satoshi_Muto_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士（工学） 氏名 武藤 恵

学 位 論 文 題 名

動的電子顕微鏡観察法による抵抗変化メモリの動作特性とナノ構造変化に関する研究
(Study on operation property and nano-structural evolution of resistive random access memory by means of *in situ* electron microscopy)

ビッグデータや IoT の普及とともに、より効率的な情報処理が必要となっている。情報処理は CPU や GPU などの CMOS 素子で行われるため、それらの性能向上が効率的な情報処理には不可欠である。ところが、トランジスタの微細化によって推進されてきた既存の CMOS 素子の性能向上は限界が見えているといわれて久しい。露光技術の進歩や材料・構造の工夫によって性能向上は続いているものの、今後を見据えた CMOS の微細化限界を突破できる性能を持つ新たな素子の開発が必要となっている。それら新規素子の中で、抵抗変化メモリ (ReRAM) は次世代不揮発メモリとして研究開発が進められている。

ReRAM は絶縁体を金属電極で挟み込んだキャパシタ構造の素子である。その抵抗値は印加電圧の極性や大きさに制御可能であり、変化した抵抗値が情報として保存される。ReRAM の特長には、単純なスタック構造でメモリ素子ができるため集積性が高い、電圧印加をやめても抵抗値 (情報) が保持できる、ナノ秒オーダーの高速スイッチング動作が可能といったものがある。ほかにも高抵抗・低抵抗だけでなく中間的な抵抗値も保存できるためアナログメモリとしての利用も期待されており、その特性を活かしたシナプス素子の研究も進められている。不揮発メモリとしての ReRAM は、DRAM と HDD や SSD との速度差を埋めること (ストレージクラスメモリ) を目標に研究開発が進んでいる。アナログメモリとしての ReRAM は、ニューラルネットワークをハードウェアベースで構築するためのシナプス素子の候補として注目が集まっている。どちらも今後の効率的な情報処理にとって重要な要素となっている。

ReRAM の優れた特性は実証されているものの、現状ではごく限られた領域での実用化にとどまる。アナログ動作や不安定な動作 (抵抗値バラツキやスイッチ電圧バラツキなど)、劣化や破壊の原因に関する知見が乏しいことで、特性や信頼性の向上に向けた設計指針が不明確なためである。基本的な動作メカニズムは電気特性評価、透過電子顕微鏡 (TEM) 観察などにより解明されているものの、より詳細な動作原理の解明が ReRAM の広い実用化には必要である。本論文では金属フィラメント型の ReRAM (以降 CBRAM) における抵抗変化現象を研究対象としている。CBRAM の性能向上にはフィラメントの制御 (内部構造の制御) が重要だと考えられており、本研究では CBRAM の内部構造変化と電気特性とを同時に評価するため TEM による動的な観察 (TEM その場観察) 評価を行った。

以下に論文の構成を述べる。第 1 章は序論である。抵抗変化メモリの概要と応用先について説明し、本研究の目的について述べる。

第 2 章は本研究の実験手法についてである。TEM について説明した後、平面型構造 CBRAM 試料の作製について述べる。最後に TEM その場観察システムについて説明する。

第 3 章は Cu-WO_x 系 CBRAM の初期化過程における TEM その場観察についてである。

CBRAM の初期化は大電力注入による激しいものが多い。本研究では初期化過程を詳細に議論するため、穏やかな条件で初期化を行い CBRAM が抵抗スイッチング動作を開始するまでを追った。その結果、初期化による低抵抗化に伴う絶縁体内への Cu 拡散と、微小な Cu 析出の出現が観察された。初期化後は安定した 2 値的スイッチング動作 (デジタル動作) が観察された。初期化後 20 回目以降のスイッチングからは高抵抗状態の劣化とそれに伴う大きな構造変化が観察され、初期化時の Cu 大量導入が CBRAM の急速な劣化につながったことが示された。これらより CBRAM のスイッチング開始には絶縁膜への Cu 導入が必要であり、その量が初期化後のスイッチング特性に大きな影響を与えることが分かった。

第 4 章は絶縁体を変更した 2 種類の CBRAM に関する TEM 観察についてである。異なるスイッチング特性を得るために、 WO_x と MoO_x の 2 種類の絶縁体を用いた CBRAM を TEM 観察した。急峻なデジタル的特性を示す Cu- WO_x 系 CBRAM では、フィラメント形成に伴う大規模な構造変化が観察された。一方、緩やかなアナログ的特性を示す Cu- MoO_x 系 CBRAM では、抵抗変化に伴う構造変化は微小であった。これらの電気特性の違いは絶縁膜への Cu 供給で決まると考えられる。Cu が移動しにくい WO_x 系 CBRAM では一度に大量の Cu が移動してしまう。そのため、デジタル的な特性と大規模な構造変化が見られたと考えられる。一方、Cu が移動しやすい MoO_x の系では Cu の絶縁膜への供給が緩やかに行える。そのため、アナログ的な特性と緩やかな構造変化が見られたと考えられる。上記の例は異なる材料に対して同一条件で電気測定を行った結果である。過去の研究では、いずれの材料であっても、測定条件を調整することでデジタル/アナログ的動作の両方が得られることが分かっている。本研究においても両方の材料でアナログ/デジタル的動作の両方が測定されたが、材料毎に抵抗変化動作の制御性に違いがあった。 MoO_x 試料ではアナログ抵抗変化の制御がしやすく、 WO_x 試料ではデジタル抵抗変化の制御が容易であった。ここでは、デジタル/アナログ抵抗変化動作の制御性が、絶縁膜内部での Cu 移動に由来すると結論づけられた。

第 5 章は CBRAM 内部での Cu 移動と抵抗変化の関係についてである。まず低抵抗化時の代表的な Cu 移動現象であるフィラメントの形成について議論した。フィラメントの成長速度は電流値や電圧スイープ速度に影響されていることが分かった。また、フィラメント成長開始と低抵抗化のタイミングのずれから、TEM 観察された太いフィラメント形成の前に TEM 観察できない微細な電流パスが形成されている可能性が示唆された。また、電界および熱シミュレーションの結果、CBRAM ではスイッチング領域 (フィラメント形成箇所) 以外にも Cu が拡散することが予想される。今回作製した平面型試料ではスイッチング領域外への Cu 拡散が起きやすい構造であったため、高抵抗化しにくかったと考えられる。これらより CBRAM のスイッチング特性は通常議論されているような局所的フィラメントだけでなく、絶縁膜の広い範囲での Cu 拡散によっても決まるということが示唆された。

第 6 章では本研究を総括する。