

メモリデバイスを用いた微小領域の抵抗変化の動的解析 Dynamic structural analysis of the local resistance switching for ReRAM

魏 志強^a、片山 幸治^a、加藤 佳一^a、大沢 仁志^b、宇留賀 朋哉^b、谷田 肇^b、寺田 靖子^b、
高木 剛^a

Wei Zhiqiang^a, Koji Katayama^a, Yoshikazu Katoh^a, Hitoshi Osawa^b, Tomoya Uruga^b, Hajime Tanida^b,
Yasuko Terada^b and Takeshi Takagi^a

^a パナソニック株式会社、^b 高輝度光科学研究センター

^aPanasonic Corporation, ^bJapan Synchrotron Radiation Research Institute

抵抗変化現象と抵抗変化膜中 Ta 状態のプロファイルの相関を明らかにするため、デバイスを用いて、深さ分解 XAFS 測定を行った。Ta 価数を反映する Ta L3 吸収端 9881.5eV の位置の蛍光 X 線強度の深さ分布について、Ta₂O₅(30nm)/Pt, TaO_x(30nm)/Pt には、チャンネル番号にほぼ依存しない。よって膜内 Ta の価数が均一分布している。それに対し、デバイス (Ir/Ta₂O₅(5nm)/TaO_x(25nm)/Pt) には、チャンネル番号 100 より大きくなると、蛍光 X 線強度が強くなり、表面側が TaO_x から Ta₂O₅ へ変化していることを示唆する。

XAFS in-depth spectroscopy using synchrotron radiation was applied to the characterization of the Ta profile of ReRAM device. In the case of Ta₂O₅(30nm)/Pt and TaO_x(30nm)/Pt films, the intensity of fluorescence X-ray at 9881.5eV keeps constant for all channel numbers, while in the case of device with Ir/Ta₂O₅(5nm)/TaO_x(25nm)/Pt structure, the intensity increases when the channel number larger than 100, which indicates the increase of the Ta valence.

キーワード 抵抗変化型不揮発メモリ、深さ分解 価数

研究の背景： 抵抗変化メモリがポストフラッシュメモリとして、注目されており、盛んに研究が進められているが、その動作機構は未だ明らかになっていないという本質的な問題がある⁽¹⁻³⁾。これまで、抵抗変化デバイスの電気特性評価と並行して、各種分析手法を用いた物性評価を進めてきたが、抵抗変化現象を十分説明できていない。研究の目的は、微細の領域に、非破壊で動作しながら深さ方向の局所構造と化学状態の変化を評価することである。今回はその第一歩として BL37XU で開発されている KB ミラーを用いたマイクロビームと、SPring-8 で開発を進めている深さ分解 XAFS を組み合わせた 3 次元 XAFS 測定の構築を行い、それを利用して抵抗変化メモリデバイス中の Ta 状態の深さ分布を捉える事を試みた。深さ分解 XAFS は、試料から放出される蛍光 X 線を 2 次元ピクセル検出器 (PILATUS) により出射角毎に記録する事により行われた。

試料と測定方法： 図 1 にデバイスの断面構造を示す。Ir/Ta₂O₅(5nm)/TaO_x(25nm)/Pt の層構造の周囲は、深さ分解 XAFS 測定するための X 線減衰層で囲っている。電氣的に動作させるように PAD を配置、PAD からアルミ配線による測定装置に接続する (図示せず)。

本実験は、SPring-8, BL37XU において行った。2 次元ピクセル検出器 (PILATUS) により、出射角毎の蛍光 X 線強度を記録する事により深さ分解 XAFS を測定した。浅い角度で出射される蛍光 X 線は、より大きな角度で出射される蛍光 X 線に比べ、表面からの X 線成

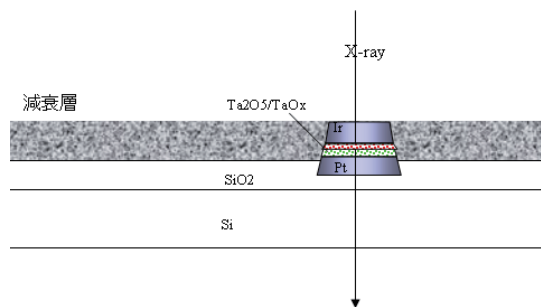


図1デバイス断面構造

分が多い。これは、PILATUS 上では、試料の表面により近い素子は、試料の表面により敏感になる事を示している。本研究では、PILATUSにより得られた蛍光 XAFS を出射角ごとに分解、プロットして、表面近傍からより深い部位に向けての試料深さプロファイルを変化した XAFS の変化を捉える事を試みた。

結果と考察： 参考べた膜試料含め、 $\text{Ta}_2\text{O}_5(30\text{nm})/\text{Pt}$, $\text{TaOx}(30\text{nm})/\text{Pt}$, $\text{Ta}_2\text{O}_5(5\text{nm})/\text{TaOx}(25\text{nm})/\text{Pt}$, デバイス ($\text{Ir}/\text{Ta}_2\text{O}_5(5\text{nm})/\text{TaOx}(25\text{nm})/\text{Pt}$) を用いて、Ta L3 吸収端の X 線吸収測定を行った。図 1 示すように Ta の価数により、Ta L3 XANES のピーク位置が変化する。Ta 価数増加に従って、ピーク位置は高エネルギー側へシフトする。そのため、図 2(b) 示すように、各試料について 9881.5eV の位置の蛍光 X 線強度の深さ分布をプロットすると、その強度分布は Ta 価数の深さプロファイルに関連した物であると考えられる。図 2(b) には各試料の結果を示す。縦軸は PILATUS 二次元検出器のチャンネル番号である。ここで、チャンネル番号が大きいほど、小さな出射角度の蛍光 X 線に対応、すなわち、

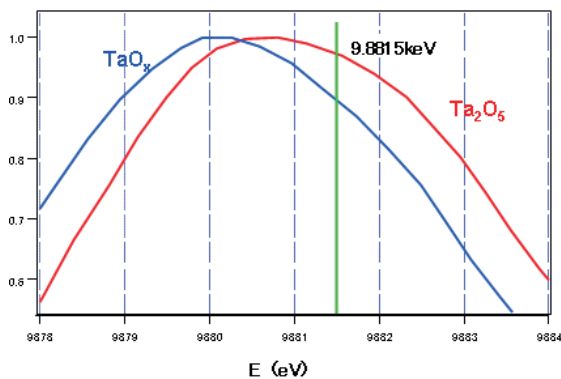


図 2(a) Ta L3 XANES

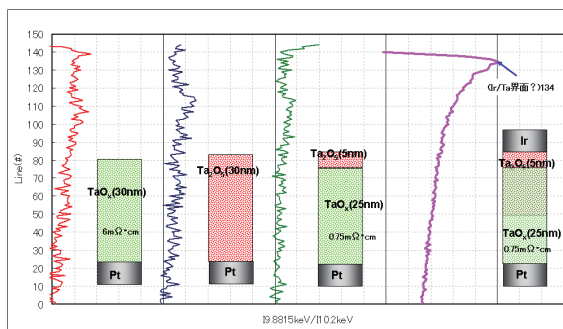


図 2(b) 各試料のプロファイル

得られた蛍光 X 線は、より表面に起因する成分が多いと言う事になる。より詳細な解析は必要であるが、図 2 に示した結果から、現時点では次の事を伺い知ることが出来る。

- ① $\text{Ta}_2\text{O}_5(30\text{nm})/\text{Pt}$, $\text{TaOx}(30\text{nm})/\text{Pt}$ について、チャンネル番号にほぼ依存しない。よって膜内 Ta の価数が均一分布していると思われる。
- ② $\text{Ta}_2\text{O}_5(5\text{nm})/\text{TaOx}(25\text{nm})/\text{Pt}$ について、チャンネル番号 140 より大きくなると、9881.5eV の位置の蛍光 X 線強度が強くなる。これは表面が TaOx から Ta_2O_5 へ変化していることと対応する。
- ③ デバイス ($\text{Ir}/\text{Ta}_2\text{O}_5(5\text{nm})/\text{TaOx}(25\text{nm})/\text{Pt}$) について、チャンネル番号 100 より大きくなると、9881.5eV の位置の蛍光 X 線強度が強くなる。これは表面側が TaOx から Ta_2O_5 へ変化していることを示唆する。②の単なる蒸着膜と比べて、プロファイルの変化が緩やかである。これはデバイスを作製中の熱により Ta_2O_5 から TaOx へ酸素拡散が生じ、Ta の価数分布が変化したためと推測している。さらに、チャンネル番号 134 より大きい側では 9881.5eV の位置の蛍光 X 線強度が急に弱くなり、ここが $\text{Ir}/\text{Ta}_2\text{O}_5$ の界面であることを示唆する。

まとめ： 本研究では、マイクロビームを用いた深さ分解 XAFS 法による、微少なメモリデバイスを対象とした、測定システムを構築した。また、デバイスに電極をつけ、実際に X 線照射下で動作出来る様になっており、今回開発した測定システムは、In-situ 3 次元 XAFS 測定システムであると言えよう。本システムを利用して、デバイス中の Ta の状態のプロファイルに起因すると思われる変化を得る事に成功した。今後は、ここで得られたデータのさらなる解析を行い、また、次の段階としてデバイス動作前後の状態や動作中の動的状態変化を観察し、Ta の状態のプロファイルの変化と抵抗変化の相関を明確にしていきたい。

参考文献

- [1] A. Odagawa, et al., Appl. Phys. Lett. **91**, 133503 (2007)
- [2] S. Muraoka, et al., IEDM Tech. Dig., p.779 (2007)
- [3] Z. Wei et al., IEDM Tech Dig., p.293 (2008)