

令和 3 年 6 月 7 日現在

機関番号：82626
研究種目：基盤研究(B) (一般)
研究期間：2018～2020
課題番号：18H01484
研究課題名(和文) ハフニア系強誘電トンネル接合による人工シナプスの実現に向けた素子技術基盤の構築

研究課題名(英文) Development of HfO₂-based ferroelectric tunneling junctions for artificial synapses

研究代表者
澤 彰仁 (SAWA, Akihito)
国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・研究員

研究者番号：10357171
交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：強誘電トンネル接合(FTJ)の人工シナプスとしてのポテンシャル評価を目的に、BaTiO₃を強誘電トンネル障壁層とするFTJによりスパイク時刻依存シナプス可塑性(STDP)特性を調べ、従来型の抵抗変化メモリを用いた素子に比べ、伝導度変化のばらつきが小さく、動作安定性の優れたSTDP人工シナプスとして機能することを実証した。また、表面平坦性塗膜厚均一性の高いHfO₂系強誘電体薄膜の作製方法を開発し、同方法を用いて作製した膜厚2.4 nmのZrドープHfO₂強誘電膜を強誘電トンネル障壁層とするFTJにおいて抵抗スイッチング効果を実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、ニューロモルフィックチップの精力的な開発が展開され、その構成要素である人工シナプスとして、酸化物抵抗変化メモリ(ReRAM)などの抵抗変化メモリを用いたアレイ回路の開発が進められている。本研究では、半導体プロセスと親和性の良いHfO₂系強誘電体を用いた抵抗変メモリの一種であるFTJの開発や、FTJがReRAMよりも動作安定性の優れたSTDPシナプスとして動作することを実証した。この成果を発展させることで、FTJを人工シナプスとして用いた低消費電力のスパイクングニューラルネットワーク回路の開発が期待される。

研究成果の概要(英文)：In order to evaluate the potential of ferroelectric tunnel junctions (FTJs) for an artificial synapse, we investigated spike-timing-dependent plasticity (STDP) characteristics of BaTiO₃-based FTJs. We demonstrated stable STDP characteristics in the BaTiO₃-based FTJ, i.e., the variation in conductance change in STDP curve of the BaTiO₃-based FTJ was much smaller than that of conventional resistive switching memories. We also developed a fabrication technique of polycrystalline ferroelectric HfO₂ films with sharp and uniform interfaces over a large area on indium-tin oxide (ITO) layers and demonstrated resistive switching in FTJs with 2.4-nm-thick Zr-doped HfO₂ barrier layers.

研究分野：酸化物エレクトロニクス

キーワード：電子・電気材料 表面・界面物性 トンネル接合

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

IBM の TrueNorth に代表されるように、近年、ニューロモルフィックチップの精力的な開発が展開されている。その構成要素である人工シナプスとして、酸化物抵抗変化メモリ (ReRAM) などの抵抗変化メモリを用いたアレイ回路の開発が進められているが、酸化還元反応を動作機構とする ReRAM は、実用上重要な信頼性の面で本質的な問題を抱えている。この問題の解決策として、近年、電子的機構である分極反転により素子抵抗が変化する強誘電トンネル接合 (FTJ) を用いた人工シナプスの研究が行われている。しかし、これまでの研究の多くは、 BiFeO_3 や BaTiO_3 などのペロブスカイト型強誘電体や酸化物単結晶基板を用いており、実用的な人工シナプスに向け、半導体プロセスと親和性の良い材料による FTJ の開発が課題となっていた。そのような状況の中、既に半導体プロセスに導入されている HfO_2 薄膜において、Y や Zr ドープによる強誘電性の発現が確認され、近年、 HfO_2 系 FTJ の研究開発が行われるようになった。この HfO_2 系 FTJ は、CMOS と集積可能な人工シナプスの基本セルの有力な候補として期待されているが、その研究は始まったばかりであり、応用に不可欠な素子特性の制御技術の開発が課題となっている。

2. 研究の目的

本研究では、FTJ による人工シナプス実現に向けた素子技術基盤の構築を目的に、まず FTJ の人工シナプスとしてのポテンシャルを評価するため、実績のある BaTiO_3 (BTO) を強誘電トンネル障壁層とする FTJ を用いて、スパイク時刻依存シナプス可塑性 (Spike-Timing-Dependent Synaptic Plasticity; STDP) の実証と、その特性制御の指針を明らかにすることを目指した。次に、半導体プロセスと親和性の高い HfO_2 系強誘電体を強誘電トンネル障壁層に用いた FTJ の実現に向け、表面平坦性、膜厚均一性の高い HfO_2 系強誘電超薄膜の作製技術の確立と、 HfO_2 系 FTJ による抵抗スイッチング効果の実証、さらに STDP の実証を目指した。

3. 研究の方法

(1) FTJ の人工シナプスとしてのポテンシャル評価

FTJ の人工シナプスとしてのポテンシャルを評価するため、不揮発な抵抗スイッチング効果の実績のある BTO-FTJ を用いて STDP の測定を行った。膜厚 3.2 nm の BTO 膜を強誘電トンネル障壁層、 SrRuO_3 (SRO) を下部電極、Au/Pt 積層膜を上部電極に用いた Au/Pt/BTO/SRO 構造で、接合のサイズが $\phi 2.8 \mu\text{m}$ の素子を測定に用いた。図 2 に示す様々な波形のスパイク信号を素子に印加し、STDP 特性のスパイク信号波形依存性を評価した。

(2) HfO_2 系 FTJ の開発

HfO_2 と似た結晶構造を有する ITO を下部電極の材料として選択し、パルスレーザー堆積 (PLD) 法により室温で製膜した ITO のアモルファス薄膜の上に、アモルファス HfO_2 薄膜を積層し、ポストアニールすることにより結晶化する製膜手法を採用した。原料となるセラミックターゲットの作製・保管条件、アモルファス膜の作製時の雰囲気、ポストアニール時の温度、時間等を系統的に変化させて製膜を行い、それら製膜条件と HfO_2 系強誘電体超薄膜の強誘電特性、表面平坦性の関係性を評価した。

Zr ドープ HfO_2 (HZO) 膜を強誘電トンネル障壁層、ITO を下部電極、Au/Pt 積層膜を上部電極に用いた FTJ を作製し、素子の伝導特性の HZO 膜厚依存性を評価するとともに、抵抗スイッチング効果を検証、評価した。

4. 研究成果

(1) FTJ の人工シナプスとしてのポテンシャル評価

図 1 は、BTO-FTJ に 2 つのスパイク信号を時間差 Δt で入力した際の伝導度変化 ΔG を Δt に対してプロットしたグラフである。 $\Delta t < 0$ において伝導度が増加 ($\Delta G > 0$) し、 $\Delta t > 0$ において伝導度が減少 ($\Delta G < 0$) する典型的な STDP カーブが得られ、BTO-FTJ が STDP シナプスとして動作していることが分かる。同様の STDP 特性は、従来型の ReRAM でも報告されているが、酸化物の酸化還元反応を動作機構とする ReRAM は、抵抗スイッチングの繰り返しに対する伝導度変化のばらつきが大きいため、STDP カーブにおける Δt に対する ΔG のばらつきが大きいが、ニューロモルフィックチップ等の電子回路を構成する上での問題となる可能性が指摘されていた。一方、本研究で得られた BTO-FTJ の STDP カーブでは、ReRAM で報告されている STDP カーブに比べ、 ΔG のばらつきが小さく、動作が安定しており、回路構成の点において、FTJ は ReRAM よりも人工シナプスとして高いポテンシャルを有していることが示唆される。これは、FTJ では強誘電分極の反転が抵抗スイッチング (伝導度変化) の動作機構であり、従来型の強誘電体メモリ (FeRAM) と同様に、繰り返しスイッチングに対して動作が安定していることに起因すると考えられる。

図 2 は、3 種類のスパイク信号 (TT、RT、RR) を入力した際に得られた STDP カーブについて、伝導度変化が観測される Δt の時間ウィンドウ (τ_c) と伝導度変化の最大値 (ΔG_{max}) のス

パイク信号の強度 (V_{peak}) と時間幅 (t_d) に対する依存性をプロットしたグラフである。図 2(a)、(c)、(e)、(g)、(i)、(k) の実線は、重畳したスパイク信号の電圧強度と FTJ の抵抗スイッチングの閾値電圧の関係、FTJ の非線形な電流-電圧 ($I-V$) 特性を考慮して導いた「スパイク信号波形と STDP カーブの伝導度変化、時間ウィンドウの関係式」(詳細は、Scientific Reports 9, 17740 (2019) を参照) から得られた計算値である。実験結果と計算値のよい一致が見られ、この結果は、本研究で導いた関係式を用いてスパイク信号の波形、電圧強度、時間幅等のパラメータを設定することで、任意の STDP カーブを得ることができる (STDP 特性を制御できる) ことを示しており、実際に、異なる 3 種類の波形のスパイク信号を用いた場合でも、関係式により得られた電圧強度と時間幅に設定することで、同じ τ_c と ΔG_{max} を持った STDP 特性を得ることに成功した (詳細は、Scientific Reports 9, 17740 (2019) を参照)。

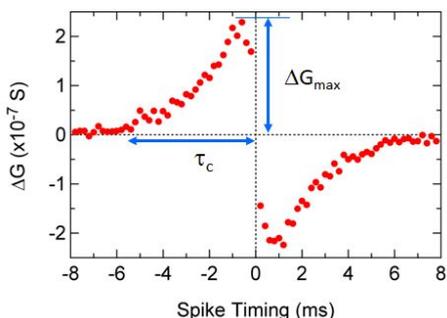


図 1 BaTiO₃-FTJ の STDP 特性。2 つのスパイク信号を時間差 Δt で入力した際の伝導度変化 ΔG を Δt に対してプロット。

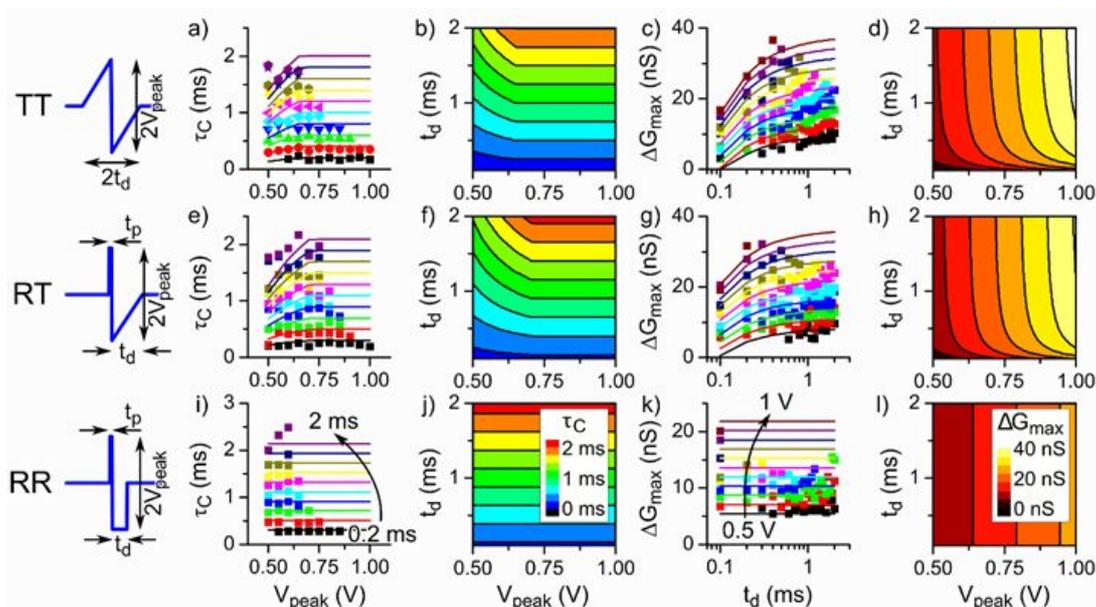


図 2 3 種類のスパイク信号 (TT、RT、RR) を入力した際に得られた STDP カーブの τ_c と ΔG_{max} のスパイク信号の V_{peak} と t_d に対する依存性。(a)、(c)、(e)、(g)、(i)、(k) の実線は、本研究で導いた「スパイク信号波形と STDP カーブの伝導度変化、時間ウィンドウの関係式」から得られた計算値 (Scientific Reports 9, 17740 (2019) を参照)。

(2) HfO₂ 系 FTJ の開発

図 3 は、室温で製膜した ITO 酸化物金属のアモルファス薄膜の上にアモルファス Y ドープ HfO₂ (YHO) 薄膜を製膜し、ポストアニールして作製した YHO/ITO 積層膜の透過電子顕微鏡写真である。この結果から、広範囲で膜厚が均一な YHO 膜が得られていることが分かり、また原子間力顕微鏡 (AFM) 観察により、表面も平坦であることを確認した。セラミックターゲットの作製・保管条件、アモルファス膜の作製時の雰囲気、ポストアニール時の温度、時間等を系統的に変化させて製膜を行った結果、室温で形成したアモルファス ITO 薄膜中に含まれる水分により、アニール中に ITO 薄膜が結晶化する際に還元されて格子定数が大きくなり、HfO₂ との格子整合性がよくなったことで、図 3(c)-(d) が示すように、斜方晶の HfO₂ 薄膜が ITO 薄膜上に疑似コヒーレント成長していることが分かった。膜厚均一性と表面平坦性の高い薄膜の成長は、この疑似コヒーレント成長に起因していると考えられる。図 4 は、膜厚 12 nm の YHO 膜の分極-電界 ($P-E$) 特性であり、良好な強誘電特性を有していることが確認できた。

図5は、上述の製膜法により作製した、ZrドープHfO₂(HZO)膜を強誘電トンネル障壁層、ITOを下部電極、Au/Pt積層膜を上部電極とするFTJの低電圧領域(|V| ≤ 1V)における電流密度-電圧(|J| - V)特性である。HZOトンネル障壁層の膜厚を薄くしていくとトンネル効果を反映して電流が指数関数的に増大している。抵抗スイッチング効果の検証するため高電圧を印加してJ-V特性を測定した結果、HZOの膜厚が4.2nmのFTJではトンネル電流が小さく、抵抗スイッチング効果は観測できなかったが、膜厚が3.5nm以下のFTJにおいて抵抗スイッチング効果の特徴であるJ-V特性のヒステリシスが観測された(図6は、HZOの膜厚が2.4nmのFTJのJ-V特性)。しかし、抵抗スイッチングによる抵抗変化は時間とともに急速に緩和し、不揮発な抵抗変化を示さなかった。そのため、不揮発な抵抗変化を必要とするSTDPの実証には至らなかった。

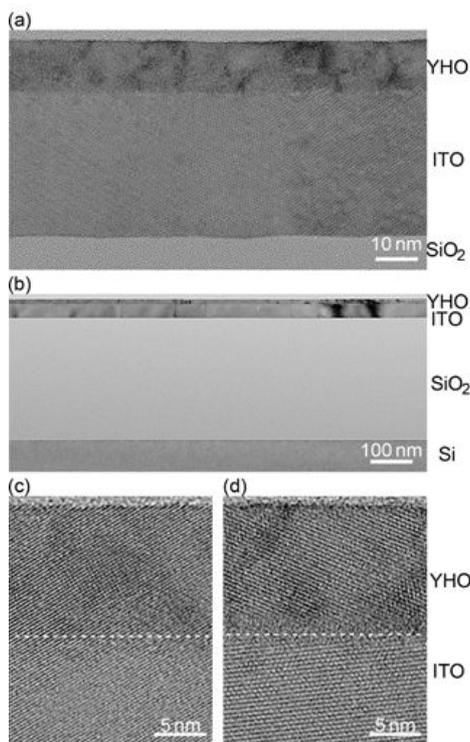


図3 YドープHfO₂(YHO)/ITO積層膜の透過電子顕微鏡写真。(c)、(d)はYHO/ITO界面の拡大写真。

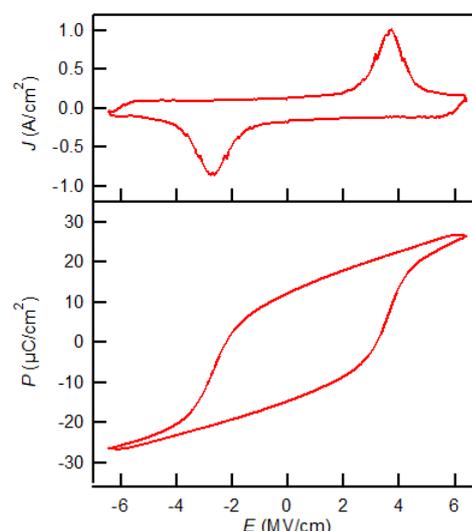


図4 膜厚12nmのYHO膜の電流-電界(J-E)特性と分極-電界(P-E)特性。

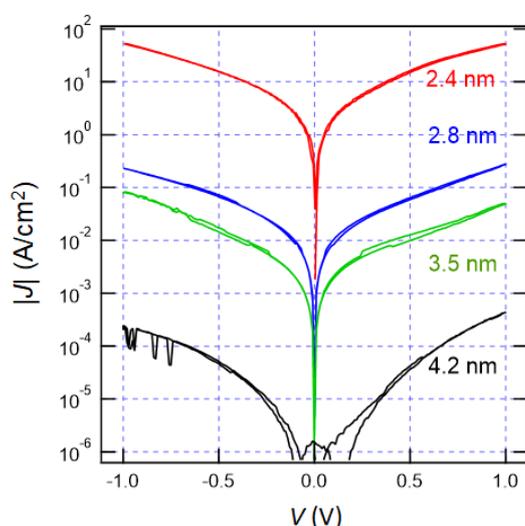


図5 ZrドープHfO₂(HZO)膜を強誘電トンネル障壁層に用いたFTJのJ-V特性(|V| ≤ 1V)のHZO膜厚依存性。

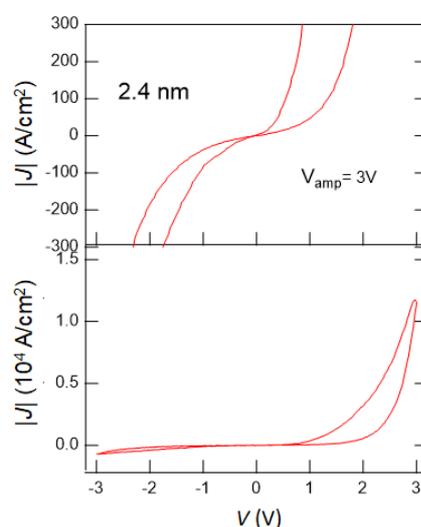


図6 HZOの膜厚が2.4nmのFTJのJ-V特性(|V| ≤ 3V)のHZO膜厚依存性。抵抗スイッチング効果に起因するJ-V特性のヒステリシスを観測。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Pablo Stoliar, Hiroyuki Yamada, Yoshikiyo Toyosaki, Akihito Sawa	4. 巻 9
2. 論文標題 Spike-shape dependence of the spike-timing dependent synaptic plasticity in ferroelectric-tunnel-junction synapses	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 17740-1-10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-019-54215-w	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Yamada Hiroyuki, Toyosaki Yoshikiyo, Sawa Akihito	4. 巻 124
2. 論文標題 Growth and ferroelectric properties of yttrium-doped hafnium oxide/indium-tin oxide polycrystalline heterostructures with sharp and uniform interfaces	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 105305 - 105305
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5046866	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 3件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 澤彰仁, 山田 浩之, Stoliar Pablo, 豊崎 喜精
2. 発表標題 BaTiO ₃ -FTJの抵抗変化メモリ効果とシナプス応用
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 澤彰仁, 山田 浩之
2. 発表標題 酸化物界面物性と電子デバイス応用
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 澤 彰仁、豊崎 喜精、山田 浩之
2. 発表標題 Nonvolatile resistive switching memories based on ferroelectric tunnel junctions
3. 学会等名 International Conference on Nanoelectronics Strategy (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Stoliar Pablo、Schulman Alejandro、鬼頭 愛、澤 彰仁、井上 公
2. 発表標題 Highly Stable Artificial STDP Synapse Based on Oxide FET
3. 学会等名 5th International Workshop on Complex Oxides (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 澤彰仁、山田 浩之、豊崎 喜精、Stoliar Pablo
2. 発表標題 Effects of Interfaces and Electrode Materials on Ferroelectric Resistive Switching Characteristics
3. 学会等名 18th IEEE Non Volatile Memory Technology Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	山田 浩之 (YAMADA Hiroyuki) (00415762)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・電子光基礎技術研究部門・研究グループ長 (82626)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	ストリア パブロ (STOLIAR Pablo)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・デバイス技術研究部門・主任研究員 (82626)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関