

06

## Исследование свойств филаментов в структурах на основе $\text{HfO}_2$ при помощи атомно-силовой микроскопии с измерением проводимости

© А.Г. Исаев,<sup>1,2</sup> О.О. Пермьякова,<sup>1,2</sup> А.Е. Рогожин<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Физико-технологический институт им. К.А. Валиева РАН,  
117218 Москва, Россия

<sup>2</sup> Московский физико-технический институт (государственный университет),  
141701 Долгопрудный, Московская обл., Россия  
e-mail: isaev.ag@phystech.edu

Поступило в Редакцию 18 января 2023 г.

В окончательной редакции 19 мая 2023 г.

Принято к публикации 16 июня 2023 г.

Представлены результаты исследования переключения в структурах  $\text{Pt}/\text{HfO}_2/\text{HfO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ ,  $\text{Pt}/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  и  $\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ , в которых оксидные слои наносились атомно-слоевым осаждением. С помощью атомно-силовой микроскопии с измерением проводимости продемонстрировано образование проводящих филаментов во всех трех структурах. Также продемонстрирован полный цикл резистивного переключения в данных структурах зондом микроскопа. Изучены свойства филаментов, сформированных при различных электрических напряжениях между зондом и нижним электродом, представлены распределения чисел филаментов по проводимости и размеру. Произведено сравнение характеристик исследуемых структур. Показано, что структура  $\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  имеет наибольший потенциал использования в резистивной памяти с произвольным доступом.

**Ключевые слова:** мемристор, резистивное переключение, резистивная память с произвольным доступом, атомно-силовая микроскопия с измерением проводимости.

DOI: 10.21883/JTF.2023.08.55976.9-23

### Введение

В ближайшем будущем наноэлектроника столкнется с затруднениями при масштабировании традиционных видов памяти. Необходима разработка новых видов памяти, позволяющих добиться большей плотности элементов при столь же высоких прочих характеристиках, таких, как скорости чтения и записи, энергопотребление и время хранения информации. Одним из самых перспективных кандидатов на роль такой памяти представляется резистивная память с произвольным доступом (ReRAM) [1]. Такая память может быть реализована на основе мемристорных металл–диэлектрик–металл (МДМ) структур, в которых возможно резистивное переключение (РП) — циклическое изменение электрического сопротивления между стабильными состояниями под действием электрического поля. Изменение сопротивления ячейки происходит за счет образования проводящих филаментов в слое диэлектрика. Состояние с высоким сопротивлением соответствует логическому нулю, а с низким — единице. ReRAM может потенциально обеспечить высокую плотность структур (размер одной ячейки может быть менее 10 nm) [2,3], время записи — менее 1 ns [4], число циклов перезаписи — более  $10^9$  [5], время хранения информации — более 10 лет и энергопотребление менее 1 pJ на ячейку [2]. Несмотря на то что уже был представлен ряд про-

тотипов ReRAM [6,7], существует ряд проблем, препятствующих массовому использованию ReRAM, среди которых — отсутствие структур, которые бы одновременно удовлетворяли всем требованиям по характеристикам, и существенный разброс характеристик от ячейки к ячейке и во времени [8]. На сегодняшний день наиболее перспективными материалами представляются оксиды гафния и тантала. В структурах на основе этих материалов были достигнуты как субнаносекундное переключение [4,9], так и число циклов переключения более  $10^9$  [5,10,11]. Было показано, что двухслойные структуры на основе оксидов гафния и тантала могут демонстрировать лучшие характеристики переключения, чем структуры на основе только одного из этих материалов [12]. Для снижения разброса характеристик в некоторых работах использовался дополнительный ультратонкий слой оксида алюминия, расположенный на границе с одним из электродов [13,14]. Этот слой позволяет лучше локализовать филаменты, тем самым снижая разброс характеристик, а также повышает отношение сопротивлений. Формирование оксидных слоев методом атомно-слоевого осаждения (АСО) обеспечивает высокую однородность структур, тем самым также снижая колебания характеристик [15,16]. Таким образом, многослойные структуры на основе оксидов гафния, тантала и алюминия, сформированные методом АСО, представляются перспективными кандидатами для ис-

**Таблица 1.** Состав активного слоя для структур M1, M2, M3

Структура	Слой 1	Слой 2	Слой 3
M1	—	2 nm HfO <sub>2</sub>	4 nm HfO <sub>x</sub> N <sub>y</sub>
M2	—	2 nm HfO <sub>2</sub>	4 nm TaO <sub>x</sub> N <sub>y</sub>
M3	0.5 nm Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.5 nm HfO <sub>2</sub>	4 nm TaO <sub>x</sub> N <sub>y</sub>

пользования в ReRAM. Для лучшей оценки перспектив таких структур необходимо определение механизмов РП в них и изучение свойств проводящих филаментов, за счет которых происходит РП. В настоящей работе для этих целей применялась атомно-силовая микроскопия с измерением проводимости (П-АСМ) — широко применяемый метод для изучения подобных структур [17].

## 1. Методы формирования и исследования мемристорных структур на основе оксидов гафния и тантала

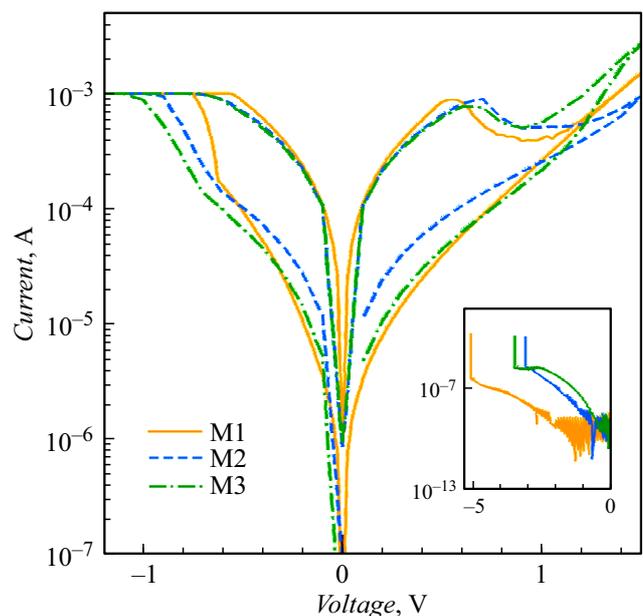
Для изучения механизмов резистивного переключения в структурах на основе оксидов гафния и тантала были изготовлены три типа структур: HfO<sub>2</sub>/HfO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>/TiN, HfO<sub>2</sub>/TaO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>/TiN и Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/HfO<sub>2</sub>/TaO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>/TiN (далее структуры M1, M2 и M3 соответственно). На кремниевую пластину толщиной 650 μm методом реактивного магнетронного распыления на постоянном токе наносился нижний электрод из нитрида титана толщиной 200 nm. Затем методом АСО формировались еще 5 nm нитрида титана, а также активный слой общей толщиной 6 nm (табл. 1). Для осаждения HfO<sub>2</sub> использовалось термическое АСО при температуре 300 °C, прекурсоры — ТЕМАН и пары воды. Осаждение оксидов гафния и тантала с повышенной концентрацией кислородных вакансий производилось при помощи плазмостимулированного АСО при температуре 300 °C, прекурсоры — ТЕМАН (оксид гафния)/ТВТДЕТ (оксид тантала) и плазма водорода. Для осаждения Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> использовалось термическое АСО при температуре 300 °C, прекурсоры — ТМА и пары воды. Для измерения ВАХ верхние платиновые электроды (диаметр 200 μm и толщина 100 nm) осаждались методом магнетронного распыления через теньевую маску.

При исследовании ВАХ структур с верхним электродом использовалась система Keithley 4200-SCS. Для исследования механизмов РП применялся метод П-АСМ, реализованный в микроскопе модели СММ-2000. В качестве верхнего электрода структур использовался зонд микроскопа с проводящим покрытием из платины Golden Silicon Probes CSG01/Pt, силовая константа 0.003–0.13 N/m, радиус острия 35 nm. Время сканирования 12 min, размер изображения 2.1 × 2.1 μm<sup>2</sup> (512 × 512 пикселей). Сканирование производилось на атмосфере. Обработка П-АСМ изображений выполнялась в программе анализа СММ-2000. Поскольку при

отведенном П-АСМ зонде наблюдались токи до 25 pA (токовые шумы), области, в которых измеренный ток был менее 30 pA, считались непроводящими; области, в которых ток составлял от 30 pA до 12 nA, считались проводящими. При исследовании распределения числа филаментов по измеренному значению тока учитывалось максимальное полученное значение тока для каждого конкретного филамента. При исследовании размеров филаментов применялась медианная фильтрация для снижения влияния шумов на размеры и форму сечения филамента.

## 2. Исследование ВАХ структур на основе оксидов гафния и тантала

Для всех структур M1-M3 были получены ВАХ bipolarного резистивного переключения рис. 1. Основные характеристики РП приведены в табл. 2. Во всех трех структурах были получены низкие рабочие напряжения менее 1 V. Напряжения формовки в структурах M2 и M3 составляли около 3 V, в M1 оно было значительно выше. Наилучшее отношение сопротивлений было получено



**Рис. 1.** ВАХ РП и электроформовки структур Pt/HfO<sub>2</sub>/HfO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>/TiN, Pt/HfO<sub>2</sub>/TaO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>/TiN, и Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/HfO<sub>2</sub>/TaO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>/TiN.

**Таблица 2.** ВАХ переключения для структур M1, M2, M3

Структура	M1	M2	M3
Среднее напряжение формовки, V	-5	-3.3	-3.1
Напряжение включения, V	-0.7	-0.74	-0.87
Напряжение выключения, V	0.52	0.68	0.65
Отношение сопротивлений	18	9	20

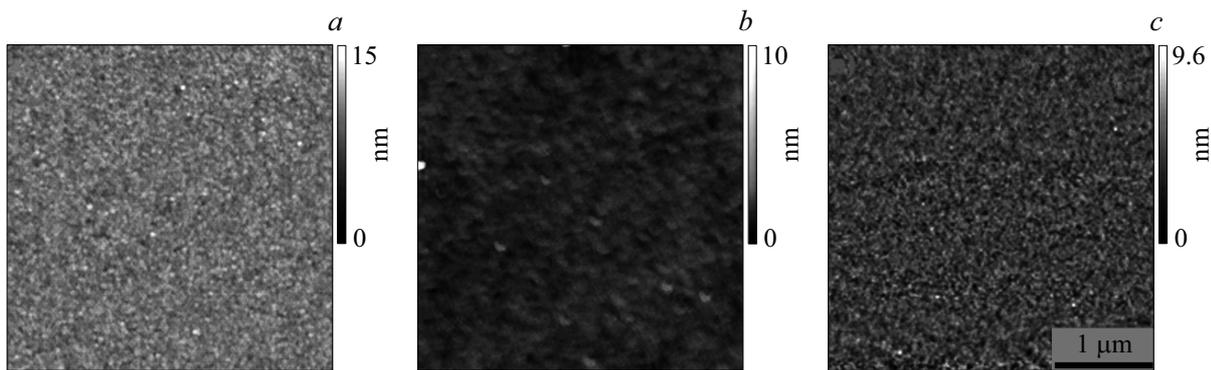


Рис. 2. АСМ изображение поверхности структуры: *a* —  $\text{HfO}_2/\text{HfO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ , *b* —  $\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ , *c* —  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ .

в структуре М3 благодаря ультратонкому слою оксида алюминия.

### 3. Исследование механизмов резистивного переключения при помощи П-АСМ

На рис. 2 приведено АСМ изображение топографии поверхности трех структур. У всех изученных структур среднеквадратичная шероховатость поверхности составляла менее 1 nm. Низкая шероховатость поверхности оксидного слоя достигнута благодаря использованию метода АСО.

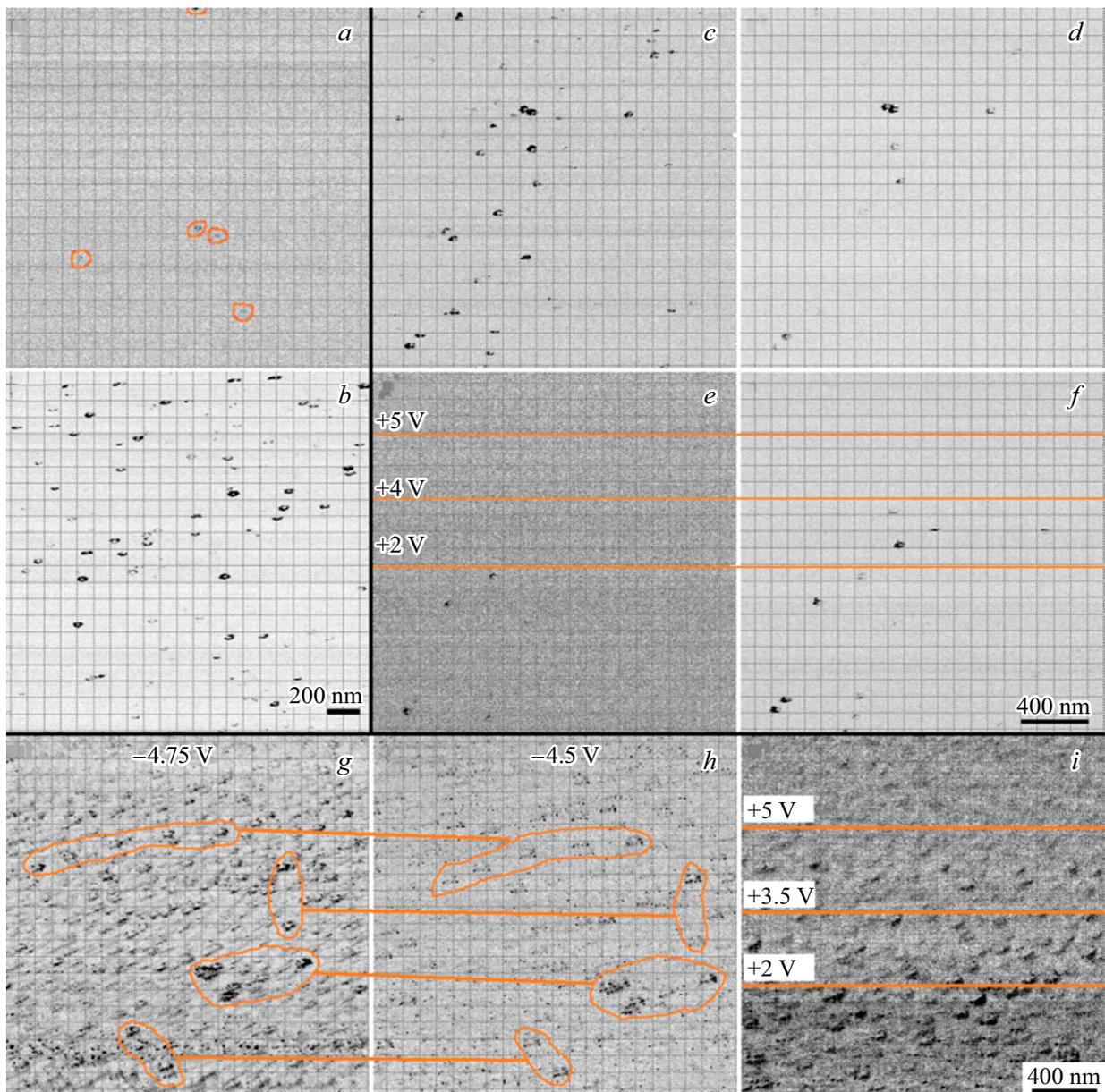
Резистивное переключение производилось сканированием области образца зондом П-АСМ при заданном напряжении. Напряжение формовки подбиралось последовательными сканированиями с увеличением напряжения на зонде по модулю с шагом 0.25 V. Электроформовка образца М1 происходила при напряжениях от  $-5$  V. При этом при последовательных сканированиях в одной и той же области с увеличением напряжения число филаментов было значительно ниже, чем при одновременном изменении области сканирования и напряжения (рис. 3, *a, b*). Данный эффект наблюдался также и в двух других образцах. Причиной такого эффекта может быть гибель кислородных вакансий при взаимодействии с атмосферой или локальное анодное окисление поверхности образца в условиях влажной атмосферы при отрицательном напряжении на зонде. Данные версии подтверждаются тем фактом, что в структурах, где активная область закрыта верхним электродом, этот эффект не наблюдался.

Для того чтобы убедиться, что наблюдаемые филаменты образуются вследствие обратимого резистивного переключения, были произведены чтения состояния и продемонстрирован один цикл переключения. Сначала была произведена электроформовка при  $-5$  V (рис. 3, *c*). Затем было произведено чтение полученного состояния при  $-4$  V для подтверждения воспроизводимости филаментов. Чтение при меньших напряжениях не удалось,

вероятно, из-за окисления верхней части филамента в атмосфере. Часть сформированных при  $-5$  V филаментов воспроизвелись при напряжении  $-4$  V (рис. 3, *d*). Затем было произведено „выключение“ части области при помощи сканирования при трех различных положительных напряжениях с последовательным увеличением площади, как показано на рис. 3, *e*. При этом при сканировании с положительными напряжениями проводящих областей не наблюдалось. Более того, чтение состояния показало, что в области, подвергавшейся „выключению“, все филаменты исчезли (рис. 3, *e*). При повторном „включении“ при  $-5$  V видно, что в области, просканированной при  $+2$  V, филаменты восстановились, в то время как области, просканированные при  $+4$  и  $5$  V, остались полностью непроводящими (рис. 3, *f*). Таким образом, слишком большие напряжения при выключении могут приводить к полному разрушению филамента. Для восстановления филаментов предположительно требуются более высокие напряжения формовки.

Электроформовка в структуре М2 наблюдалась при напряжениях от  $-4.5$  V. При положительном напряжении проводящих филаментов не наблюдалось как в областях, подвергавшихся электроформовке, так и в областях, не подвергавшихся электроформовке, что свидетельствует о процессе „выключения“. Таким образом, возникновение проводящих филаментов обусловлено биполярным резистивным переключением.

Электроформовка в структуре М3 происходила при напряжениях от  $4$  V. Была подтверждена воспроизводимость сформированных филаментов. Многие филаменты, сформированные при  $-4.75$  V, воспроизводились при чтении с  $-4.5$  V, как показано на рис. 3, *g, h*. Также было произведено „выключение“ при различных напряжениях (2, 3.5 и 5 V) с последующим повторным „включением“ при  $-4.75$  V (рис. 3, *i*). При всех рассмотренных положительных напряжениях проводимость отсутствовала, что свидетельствует об успешном „выключении“. При повторном „включении“ в области, „выключенной“ при  $+5$  V, филаменты не восстановились полностью. В областях, где производилось „выключение“ при  $+2$

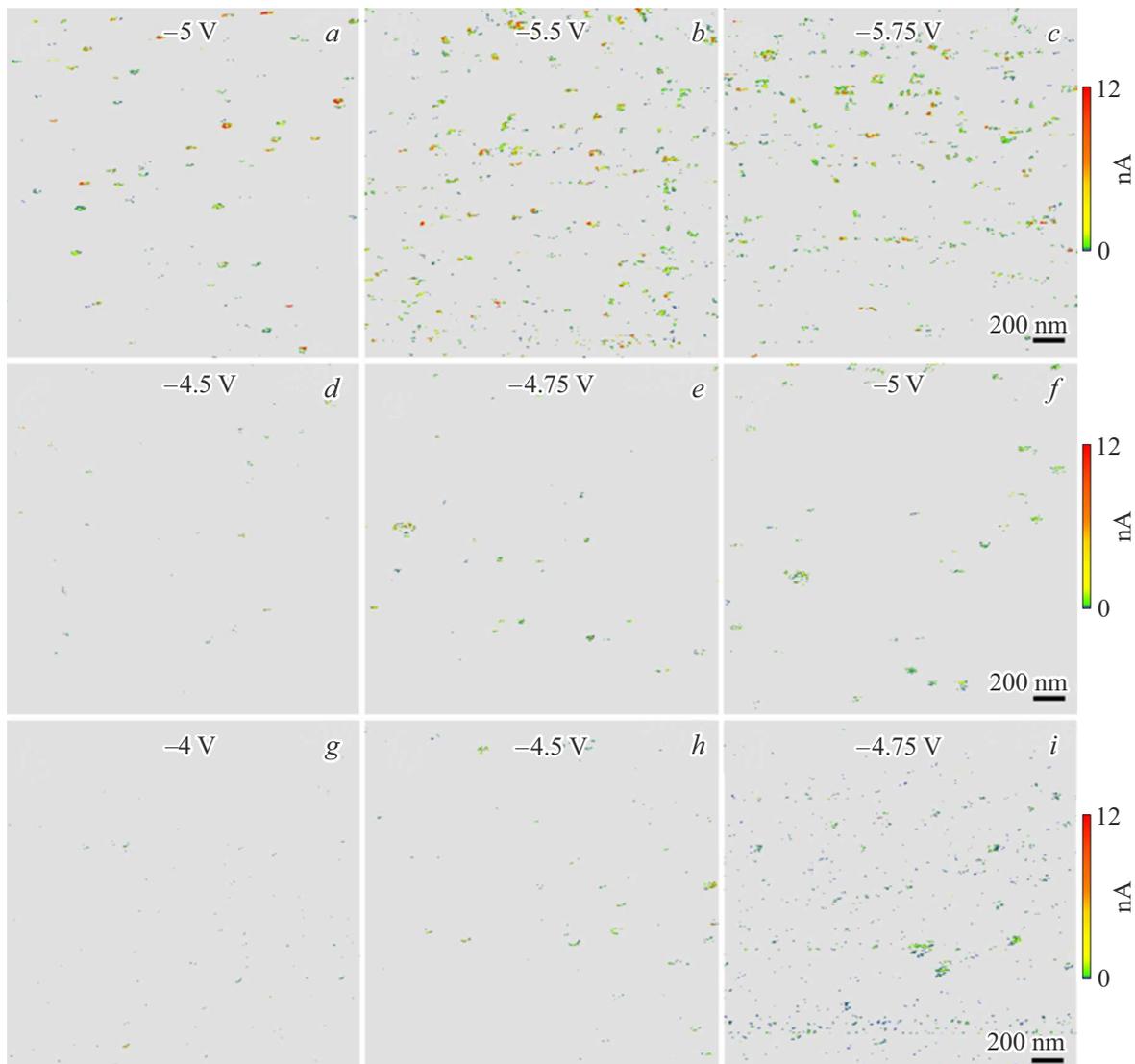


**Рис. 3.** П-АСМ изображения, демонстрирующие формирование филаментов в различных структурах. Серые считаются непроводящими, черные области считаются проводящими филаментами. П-АСМ изображения, полученные в ходе электроформовки при  $-5\text{ V}$  области структуры, подвергавшейся последовательным сканированиям увеличением напряжения от  $-4.5$  до  $-5\text{ V}$  (*a*) и новой области, не подвергавшейся сканированиям при меньших напряжениях (*b*); П-АСМ изображения полного цикла переключения в структуре  $\text{HfO}_2/\text{HfO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ : электроформовка при  $-5\text{ V}$  (*c*), чтение при  $-4\text{ V}$  (*d*), „выключение“ части области при различных напряжениях ( $+2$ ,  $+4$ ,  $+5\text{ V}$ ) (*e*) и чтение полученного состояния при  $-4\text{ V}$ , повторное „включение“ при  $-5\text{ V}$  (*f*); П-АСМ изображения одной области образца  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  при различных напряжениях: филаменты, сформированные при  $-4.75\text{ V}$  (*g*), воспроизводятся при меньшем напряжении (*h*), П-АСМ изображение образца  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ , полученное при  $-4.75\text{ V}$ , после серии сканирований при различных напряжениях „выключения“ (*i*).

и  $+3.5\text{ V}$  часть филаментов восстановилась, что свидетельствует об успешном повторном „включении“.

Во всех трех структурах наблюдалось появление проводящих областей при сканировании с отрицательными напряжениями и их исчезновение при сканировании с положительными напряжениями. На основе этих результатов, а также множества работ, в которых в

структурах на основе оксидов гафния и тантала наблюдалось филаментарное РП [18–23], можно сделать вывод о филаментарном механизме переключения в структурах М1–М3. Нефиламентарные механизмы наблюдались в основном в полупроводниковых оксидах со структурой перовскита [24], к которым оксиды гафния и тантала не относятся. Основные механизмы образования

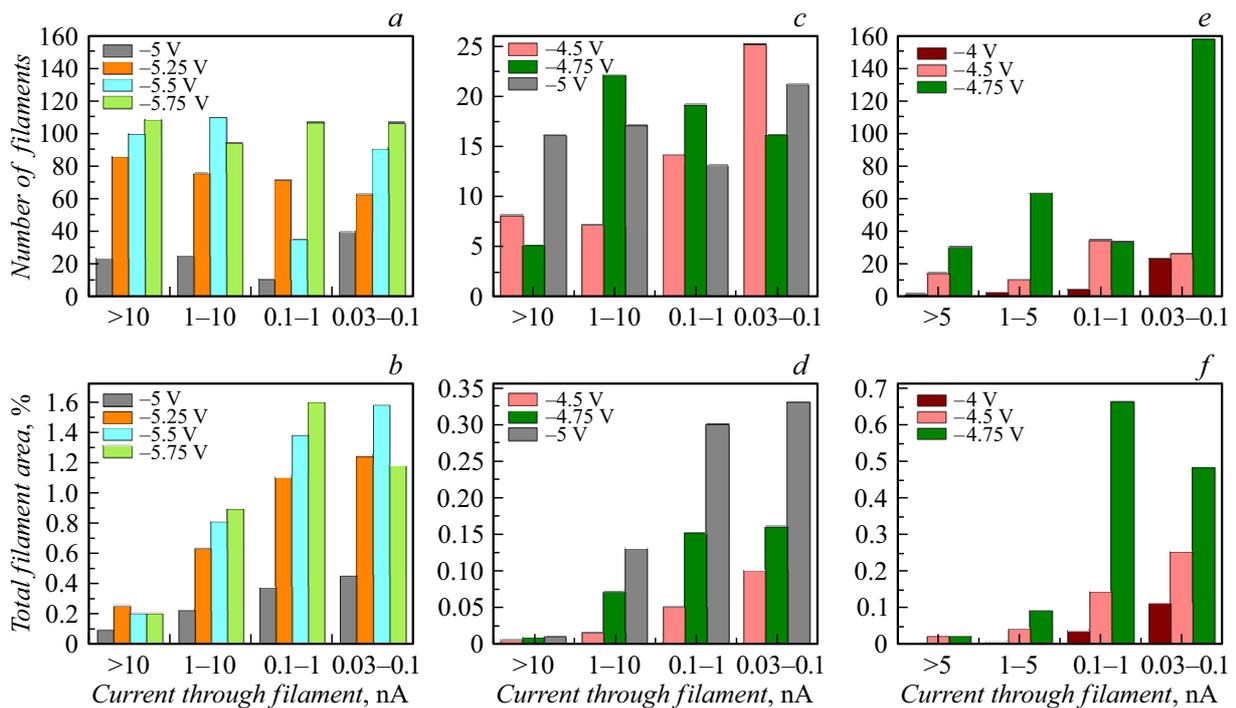


**Рис. 4.** П-АСМ изображения, полученные в ходе электроформовки структуры: *a-c* —  $\text{HfO}_2/\text{HfO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  при напряжениях от  $-5$  до  $-5.75$  В; *d-f* —  $\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  при напряжениях от  $-4.5$  до  $-5$  В, *g-i* —  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  при напряжениях от  $-4$  до  $-5.75$  В. Серым цветом обозначены непроводящие области с измеренным током менее  $30$  нА, цветами от синего до красного (в онлайн версии) обозначены области филаментов с различным измеренным током.

филаментов в мемристорах на основе оксидов переходных металлов — это миграция кислородных вакансий (VCM), миграция ионов активного электрода (ЕСМ) или термохимический механизм (ТСМ) [1]. Последний механизм, как правило, встречается в мемристорах на основе полупроводниковых оксидов (например, оксида титана [25]), и сопровождается униполярным РП. Поскольку в структурах М1–М3 наблюдалось биполярное РП, данный механизм можно исключить. ЕСМ-механизм наблюдался в структурах на основе оксидов гафния и тантала [21,23], однако как нитрид титана, так и платина плохо подходят на роль активного электрода, поэтому данный механизм также маловероятен. Таким образом, самым вероятным механизмом является миграция кислородных вакансий, которая широко встречается

в подобных структурах [18–20]. Тем не менее эффекты на границах различных оксидов пока исследованы слабо и требуют дальнейшего изучения.

Для изучения зависимости плотности пространственного распределения филаментов от напряжения формовки была произведена электроформовка образцов М1–М3 при различных напряжениях (рис. 4). В структуре М1 (рис. 4, *a-c*) при напряжениях формовки  $-5$ ,  $-5.25$  и  $-5.5$  В с ростом напряжения растет и плотность филаментов. При напряжении  $-5.75$  В заметно влияние деградации зонда, особенно в нижней части изображения, поэтому при расчете статистики учитывалась только верхняя половина изображения. В структуре М2 электроформовка наблюдалась при меньших напряжениях, чем в М1, поэтому плотность и проводимость филамен-



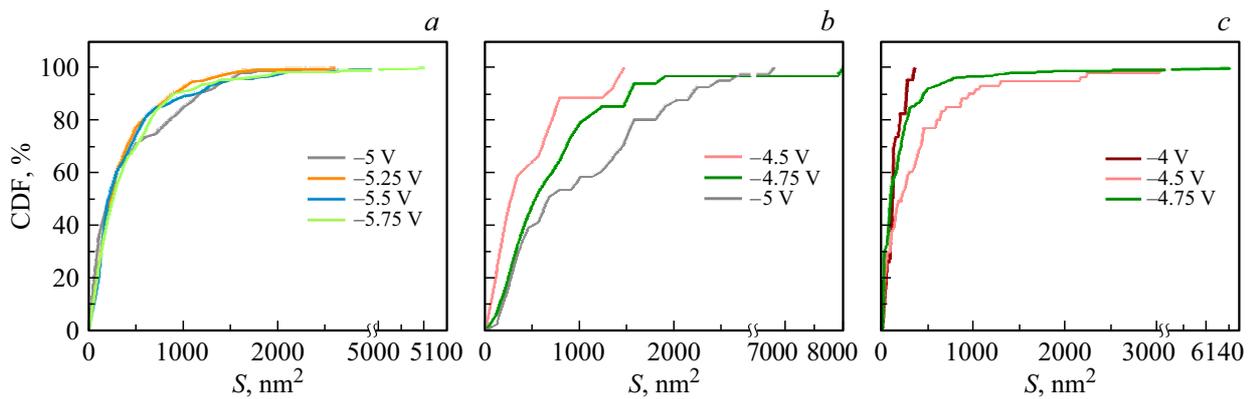
**Рис. 5.** Распределения при различных напряжениях электроформовки: *a* — числа филаментов по проводимости и *b* — суммарной доли площади заданной проводимости в структуре HfO<sub>2</sub>/HfO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>/TiN; *c* — числа филаментов по проводимости и *d* — суммарной доли площади заданной проводимости в структуре HfO<sub>2</sub>/TaO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>/TiN; *e* — числа филаментов по проводимости и *f* — суммарной доли площади заданной проводимости в структуре Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/HfO<sub>2</sub>/TaO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>/TiN. Проводимость филамента выражена через измеренный ток через филамент.

тов оказалась заметно ниже (рис. 4, *d-f*). Также важной особенностью структуры M2 является наличие крупных филаментов, образовавшихся на крупных выступающих зернах. В структуре M3 электроформовка наблюдалась при наименьших напряжениях из всех трех структур. При напряжении  $-4.75$  V наблюдалось существенное увеличение числа филаментов по сравнению с  $-4.5$  V (рис. 4, *g-i*).

На основе полученных данных были построены распределения количества филаментов в поле  $2 \times 2 \mu\text{m}$  в зависимости от их проводимости, выраженной в максимальном значении тока через филамент для четырех напряжений электроформовки (рис. 5, *a, c, e*), и распределение доли площади с заданным значением тока при различных напряжениях (рис. 5, *b, d, f*). В структуре M1 в большинстве случаев повышение напряжения приводит к увеличению числа филаментов в каждом диапазоне проводимости. Также происходит рост площади проводящих областей. Во всех четырех рассмотренных диапазонах получено близкое количество филаментов, однако суммарная площадь областей с высокой проводимостью значительно меньше суммарной площади областей со средней и низкой проводимостью (рис. 5, *b*). Этот эффект объясняется тем, что на П-АСМ снимке части филаментов вблизи границы обладают меньшей проводимостью, чем центральная часть, вероятно, вследствие особенностей измерений при помощи П-АСМ. Для

структуры M2 распределения слабо смещены в сторону низких токов. С увеличением напряжения происходит незначительный рост числа филаментов. Для распределения по площади заметно увеличение площади как для более высоких напряжений, так и для меньшей проводимости. Таким образом, с увеличением напряжения происходит преимущественно увеличение размеров филаментов, а не их количества. В структуре M3 преобладают филаменты со слабой проводимостью. Это может быть связано с более низкими, по сравнению с другими образцами, напряжениями формовки. С увеличением напряжения происходит соразмерный рост числа филаментов и их общей площади.

На рис. 6 приведены функции распределения филаментов по площади. Для M1 около 50% филаментов обладают площадью менее  $300 \text{ nm}^2$ . При напряжении  $-5$  V площади около 25% филаментов лежат в диапазоне  $700-1400 \text{ nm}^2$ . При более высоких напряжениях распределения имеют схожую форму, при этом около 80% филаментов обладают площадью менее  $600 \text{ nm}^2$ . В M2 с увеличением напряжения наблюдалось увеличение размеров филаментов. Медианное значение площади филаментов составляло 230, 470 и  $590 \text{ nm}^2$ , у 90% филаментов площадь не превышала 1130, 1350 и  $1950 \text{ nm}^2$  для напряжений  $-4.5$ ,  $-4.75$  и  $-5$  V соответственно. Эти результаты также свидетельствуют о том, что для образца M2 с ростом напряжения происходит



**Рис. 6.** Функции распределения филаментов по площади для структур: *a* —  $\text{HfO}_2/\text{HfO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ , *b* —  $\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ , *c* —  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ .

**Таблица 3.** Сравнение полученных результатов для структур M1, M2, M3

Структура		M1		M2		M3	
Среднеквадратичная шероховатость, nm		0.93		0.49		0.83	
Минимальное напряжение формовки, V		-5		-4.5		-4	
Относительная проводимость филаментов		Высокая		Средняя		Низкая	
Напряжение формовки, V		-5	-5.75	-4.75	-5	-4.75	-4.75
Общее число филаментов на снимке		96	414	54	67	283	283
Размер ячейки, на который в среднем приходится один филамент, nm		225	108	299	269	131	131
Доля площади, занимаемая филаментами, %		1.13	3.87	0.17	0.77	1.25	1.25
Медианное значение	размера сечения филаментов, nm	22	20	29	44	14	14
	площади филаментов, $\text{nm}^2$	205	250	465	590	90	90
Значение, в пределах которого лежит 90%	размеров сечения филаментов, nm	63	48	49	80	38	38
	площадей филаментов, $\text{nm}^2$	1170	900	1350	1950	450	450

увеличение размеров филаментов. В M3 при  $-4\text{ V}$  самые крупные филаменты обладают площадью  $350\text{ nm}^2$ . При  $-4.5\text{ V}$  более 50% филаментов обладают площадью менее  $200\text{ nm}^2$ , однако около 40% филаментов лежат в диапазоне от 300 до  $1100\text{ nm}^2$ . При  $-4.75\text{ V}$  распределение более крутое, медианное значение —  $90\text{ nm}^2$ , 90% филаментов не превышают  $450\text{ nm}^2$ .

В табл. 3 приведены сводные данные для всех трех структур. Структура M2 обладает наименьшей шероховатостью, однако наличие отдельных крупных выступающих зерен может привести к значительным колебаниям характеристик переключения от ячейки к ячейке при создании ReRAM. Структуры M1 и M3 также имеют приемлемую шероховатость менее 1 nm, обладая при этом лучшей однородностью поверхности. Структура M1 требует наибольших напряжений формовки, в структуре M3 возможна электроформовка при наименьших напряжениях. Меньшие токи, протекающие через филаменты, в структуре M3 могут обеспечить

потенциально низкое энергопотребление, однако они могут быть связаны с меньшими напряжениями при электроформовке. В структуре M2 наблюдалась меньшая концентрация филаментов, чем в двух других структурах при равных напряжениях ( $-5\text{ V}$  для M1 и  $-4.75\text{ V}$  для M3). В структуре M1 при  $-5.75\text{ V}$  наблюдается наибольшая концентрация филаментов. Однако в структуре M3 при  $-4.75\text{ V}$  концентрация филаментов выше, чем в M1 при  $-5\text{ V}$ , т.е. при равных напряжениях структура M3 потенциально способна обеспечить наибольшую концентрацию филаментов. Для высокой плотности интеграции в ReRAM предпочтительны филаменты меньшего размера. Структура M3 обеспечивает значительно меньшие размеры филаментов. Важно также отметить, что уменьшение области сканирования П-АСМ с увеличением разрешения и снижением скорости сканирования потенциально может привести к дальнейшему снижению размеров получаемых филаментов, а также увеличению их плотности.

Таким образом, структура М3 превосходит остальные структуры практически по всем основным характеристикам. Она обеспечивает оптимальную топографию поверхности, наименьшее напряжение формовки, большую плотность и меньший размер филаментов. Следовательно, трехслойные структуры на основе 0.5 nm оксида алюминия, 1.5 nm оксида гафния и 4 nm оксида тантала из рассмотренных структур имеют наибольший потенциал использования в ReRAM.

## Заключение

В работе изучались механизмы резистивного переключения в мемристорных структурах на основе оксидов гафния и тантала для оценки перспектив использования данных структур при создании ReRAM. Были сформированы три типа мемристорных структур:  $\text{HfO}_2/\text{HfO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ ,  $\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  и  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ . Оксидные слои суммарной толщиной 6 nm формировались АСО. Полученные образцы изучались с помощью АСМ с проводящим зондом. Среднеквадратичная шероховатость поверхности для всех типов структур составила менее 1 nm. Для всех типов структур удалось добиться формирования проводящих филаментов при помощи зонда П-АСМ. Были продемонстрированы воспроизводимость филаментов при различных напряжениях и полный цикл биполярного переключения зондом П-АСМ. Был подтвержден филаментарный механизм переключения, основанный на миграции кислородных вакансий в оксиде. В структурах  $\text{HfO}_2/\text{HfO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ ,  $\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  и  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  формовка наблюдалась при напряжениях на зонде от  $-5$ ,  $-4.5$  и  $-4$  V соответственно. С увеличением напряжения наблюдался рост плотности филаментов. Размер ячейки, на который в среднем приходится один филамент, составлял 108, 269 и 131 nm при напряжениях  $-5.75$ ,  $-5$  и  $-4.75$  V в структурах  $\text{HfO}_2/\text{HfO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$ ,  $\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  и  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  соответственно. При равных напряжениях в структуре  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  потенциально возможно получить наибольшую плотность филаментов. В этой структуре также наблюдались филаменты меньшего размера, чем в двух других структурах. На основе полученных результатов структура  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{TaO}_x\text{N}_y/\text{TiN}$  обладает наибольшим потенциалом из изученных структур для использования при создании ReRAM.

## Финансирование работы

Работа выполнена в рамках Государственного задания ФТИАН им. К.А. Валиева РАН Минобрнауки РФ по теме № FFNN-2022-0019.

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] F. Pan, S. Gao, C. Chen, C. Song, F. Zeng. *Mater. Sci. Engineer.: R: Reports*, **83**, 1 (2014). DOI: 10.1016/j.mser.2014.06.002
- [2] B. Govoreanu, G. Kar, Y.Y. Chen. In *Proc. IEDM IEEE Intern.*, Washington, DC, USA (2011), p. 31.6.1. DOI: 10.1109/IEDM.2011.6131652
- [3] S. Pi, C. Li, H. Jiang, W. Xia, H. Xin, J. Yang. *Nature Nanotechnology*, **14**, 35 (2019). DOI: 10.1038/s41565-018-0302-0
- [4] A.C. Torrezan, J.P. Strachan, G. Medeiros-Ribeiro. *Nanotechnology*, **22**, 485203 (2011). DOI: 10.1088/0957-4484/22/48/485203
- [5] M.-J. Lee, C.B. Lee, D. Lee, S.R. Lee, M. Chang, J.H. Hur. *Nature Mater.*, **10**, 625 (2011). DOI: 10.1038/nmat3070
- [6] T. Liu, T.H. Yan, R. Scheuerlein. In *Proc. IEEE J. Solid-State Circuits*, **49**, 140 (2014). DOI: 10.1109/JSSC.2013.2280296
- [7] R. Fackenthal, M. Kitagawa, W. Otsuka, K. Prall, D. Mills, K. Tsutsui. In *Proc. IEEE ISSCC (San Francisco, USA, 2014)*, p. 338. DOI: 10.1109/ISSCC.2014.6757460
- [8] M. Lanza, H.-S.P. Wong, E. Pop, D. Ielmini, D.I. Strukov, B.C. Regan. *Adv. Electron. Mater.*, **5**, 1800143 (2019). DOI: 10.1002/aelm.201800143
- [9] H.Y. Lee, Y.S. Chen, P.S. Chen. In *Proc. IEEE IEDM (San Francisco, USA, 2010)*, p. 19.7.1. DOI: 10.1109/IEDM.2010.5703395
- [10] S. Koveshnikov, K. Matthews, K. Min, D. C. Gilmer, M.G. Sung, S. Deora. In *Proc. IEEE IEDM (San Francisco, USA, 2012)*, p. 20.4.1. DOI: 10.1109/IEDM.2012.6479080
- [11] A.V. Fadeev, K.V. Rudenko. *Russ. Microelectron.*, **50**, 311 (2021). DOI: 10.1134/S1063739721050024
- [12] M.R. Park, Y. Abbas, H. Abbas, Q. Hu, T.S. Lee, Y.J. Choi. *Microelectron. Engineer.*, **159**, 190 (2016). DOI: 10.1016/j.mee.2016.03.043
- [13] S. Biswas, A. Paul, P. Das P. Tiwary, H.J. Edwards, V.R. Dhanak. In *Proc. IEEE Trans. Electron Devices*, **68**, 3787(2021). DOI: 10.1109/TED.2021.3084554
- [14] K.-M. Persson, S. Mamidala, L.-E. Wernersson. In *Proc. IEEE J. Electron Devices Soc.*, **9**, 564 (2021). DOI: 10.1109/JEDS.2021.3079398
- [15] Y.M. Chesnokov, A.V. Miakonkikh, A.E. Rogozhin, K.V. Rudenko, A.L. Vasiliev. *J. Mater. Sci.*, **53**, 7214 (2018). DOI: 10.1007/s10853-018-2099-5
- [16] C. Liu, C. Zhang, Y. Cao. *J. Mater. Chem. C*, **8**, 12478 (2020). DOI: 10.1039/D0TC02494E
- [17] U. Celano (editor). *Electrical Atomic Force Microscopy for Nanoelectronics* (Springer International Publishing, 2019), DOI: 10.1007/978-3-030-15612-1
- [18] S. Dirkmann, J. Kaiser, C. Wenger, T. Mussenbrock, *ACS Appl. Mater. Interfac.*, **10**(17), 14857 (2018). DOI: 10.1021/acsami.7b19836
- [19] S. Sharath, S. Vogel, L. Molina-Luna, E. Hildebrandt, C. Wenger, J. Kurian. *Adv. Functional Mater.*, **27**(32), 1700432 (2017). DOI: 10.1002/adfm.201700432
- [20] M.J. Lee, C. Lee, D. Lee, S. Lee, M. Chang, J. Hur. *Nature Mater.*, **10**(8), 625 (2011). DOI: 10.1038/nmat3070
- [21] H. Jiang, L. Han, P. Lin, Z. Wang, M.H. Jang, Q. Wu. *Scientific Reports*, **6**(1), 28525 (2016). DOI: 10.1038/srep28525
- [22] F. Kurnia, C. Liu, C.U. Jung, B.W. Lee. *Appl. Phys. Lett.*, **102**(15), 152902 (2013). DOI: 10.1063/1.4802263

- [23] J.H. Yoon, J. Zhang, P. Lin, N. Upadhyay, P. Yan. *Adv. Mater.*, **32** (9), 1904599 (2020). DOI: 10.1002/adma.201904599
- [24] A. Sawa. *Mater. Today*, **11** (6), 28 (2008). DOI: 10.1016/S1369-7021(08)70119-6
- [25] D.-H. Kwon, K.M. Kim, J.H. Jang, J.M. Jeon, M.H. Lee, G.H. Kim. *Nature Nanotechnology*, **5** (2), 148 (2010). DOI: 10.1038/nnano.2009.456