

**МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ В МАТЕРИАЛОВЕДЕНИИ ЭЛЕКТРОННЫХ КОМПОНЕНТОВ /
MATHEMATICAL MODELING IN MATERIALS SCIENCE OF ELECTRONIC COMPONENTS**

Известия высших учебных заведений. Материалы электронной техники. 2024. Т. 27, № 4. С. 324—329.

DOI: 10.17073/1609-3577j.met202411.636

УДК 621.315; 621.382; 004.3

**Нестационарная модель массопереноса зарядов
в самосогласованном электрическом поле для определения
влияния температуры на электрофизические свойства
металлооксидного мемристора**

© 2024 г. А. Н. Бусыгин, Б. Х. Габдулин✉, С. Ю. Удовиченко, Н. А. Шулаев,
А. Д. Писарев, А. Х. А. Ибрагим

*Тюменский государственный университет,
ул. Володарского, д. 6, Тюмень, 625003, Российская Федерация*

✉ Автор для переписки: baurzhan.gabdulin@gmail.com

Аннотация. Представлена нестационарная одномерная физико–математическая модель массопереноса кислородных вакансий и захваченных электронов в самосогласованном электрическом поле, которая позволяет точнее определить влияние температуры на электрофизические свойства металлооксидного мемристора по сравнению со стационарной и нестационарной моделями в приближении постоянного поля.

Ключевые слова: мемристор на основе оксида металла, модель массопереноса зарядов, кислородные вакансии, вольт–амперная характеристика мемристора

Благодарности: Исследование проведено при поддержке Минобрнауки РФ в рамках государственного задания (проект FEWZ–2024–0020).

Для цитирования: Бусыгин А.Н., Габдулин Б.Х., Удовиченко С.Ю., Шулаев Н.А., Писарев А.Д., Ибрагим А.Х.А. Нестационарная модель массопереноса зарядов в самосогласованном электрическом поле для определения влияния температуры на электрофизические свойства металлооксидного мемристора. *Известия высших учебных заведений. Материалы электронной техники.* 2024; 27(4): 324—329. <https://doi.org/10.17073/1609-3577j.met202411.636>

Статья подготовлена по материалам доклада, представленного на VI–й международной конференции «Математическое моделирование в материаловедении электронных компонентов», Москва, 21–23 октября 2024 г.

© 2024 National University of Science and Technology “MISIS”.

This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution License (CC-BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original author and source are credited.

A non-stationary model of mass transfer in a self-consistent electrical field for determining the influence of temperature on electrophysical properties of metal oxide memristors

A. N. Busygin, B. K. Gabdulin✉, S. Yu. Udovichenko, N. A. Shulaev,
A. D. Pisarev, A. H. A. Ebrahim

University of Tyumen, 6 Volodarskogo Str., Tyumen 625003, Russian Federation

✉ Corresponding author: baurzhan.gabdulin@gmail.com

Abstract. A non-stationary one-dimensional physical and mathematical model of mass transfer of oxygen vacancies and trapped electrons in a self-consistent electric field is presented, this model allows to determine the influence of temperature on the electrophysical properties of metal oxide memristors.

Keywords: metal oxide based memristor, physical model of charge mass transfer, oxygen vacancies and trapped electrons, current-voltage characteristic of a memristor, oxide film temperature

Acknowledgments: The study was conducted with the support of the Ministry of Education and Science of the Russian Federation within the framework of the state assignment (project FEWZ-2024-0020).

For citation: Busygin A.N., Gabdulin B.K., Udovichenko S.Yu., Shulaev N.A., Pisarev A.D., Ebrahim A.H.A. A non-stationary model of mass transfer in a self-consistent electrical field for determining the influence of temperature on electrophysical properties of metal oxide memristors. *Izvestiya vuzov. Materialy elektronnoi tekhniki = Materials of Electronics Engineering*. 2024; 27(4): 324–329. <https://doi.org/10.17073/1609-3577j.met202411.636>

Введение

С ростом миниатюризации в электронике значительное внимание уделяется созданию новых масштабируемых типов энергонезависимой памяти на основе мемристоров. Мемристорные наноструктуры — это устройства, которые изменяют и энергонезависимо сохраняют свое сопротивление (переключаются из низкопроводящего состояния в высокопроводящее и обратно) в зависимости от прикладываемого к ним напряжения. Определенные виды мемристоров, выполненных в виде структуры «металл — диэлектрик — металл», в том числе с использованием в качестве диэлектрика оксидов переходных металлов с высокой подвижностью кислородных вакансий, основаны на окислительно-восстановительных реакциях и движении ионов. Мемристоры относятся к резистивной памяти с произвольным доступом (ReRAM).

Для моделирования процесса резистивного переключения необходима модель микроскопических процессов внутри мемристорного устройства.

В работах [1—5] представлены физико-математические модели массопереноса кислородных вакансий в электрическом поле металлооксидного мемристора. В модели были включены нестационарное уравнение непрерывности концентрации вакансий и стационарное уравнение непрерыв-

ности плотности электронов. Последнее является упрощением, которое не позволяет корректно учесть переходные процессы, происходящие при приближении к напряжению переключения в условиях построения вольт-амперной характеристики (ВАХ) мемристора при различных скоростях развертки напряжения во времени. Кроме того, в моделях было использовано уравнение Лапласа для электрического поля, применимость которого обоснована малой электропроводностью диэлектрического слоя оксида металла.

В статье [6] на основе достаточно полной системы уравнений массопереноса зарядов, предложенной в работе [7], представлена простая стационарная физико-математическая модель переключения мемристора из низкопроводящего в высокопроводящее состояние. Модель, рассмотренная в статье [6], в отличие от модели, представленной в работе [7], учитывает диффузионный член в уравнении непрерывности для концентрации вакансий кислорода, связанный с наличием градиента концентрации в оксидном слое, а также процессы генерации и рекомбинации пар ион—вакансия.

В настоящей работе представлена нестационарная одномерная модель массопереноса зарядов в самосогласованном электрическом поле оксидного слоя мемристора, в которую помимо уравнений непрерывности концентрации кислородных вакансий

и ионов впервые включены нестационарные уравнения непрерывности концентрации и плотности тока захваченных электронов.

Нестационарная модель массопереноса заряда

Система нестационарных уравнений массопереноса зарядов в самосогласованном электрическом поле оксидного слоя мемристора имеет вид

$$\begin{aligned} \frac{\partial N}{\partial t} = & \vec{\nabla} \left(D \vec{\nabla} N - N \vec{V}_E \right) + \\ & + (N_{\max} - N) f_0 \exp \left(-\frac{E_g - \sqrt{\frac{q^3 E}{\pi \epsilon \epsilon_0}}}{kT} \right) - \\ & - NN_{ox} V_{Eox} \frac{q}{4\epsilon \epsilon_0 E}; \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_{ox}}{\partial t} = & \vec{\nabla} \left(D_{ox} \vec{\nabla} N_{ox} + N_{ox} \vec{V}_{Eox} \right) + \\ & + (N_{\max} - N) f_0 \exp \left(-\frac{E_g - \sqrt{\frac{q^3 E}{\pi \epsilon \epsilon_0}}}{kT} \right) - \\ & - NN_{ox} V_{Eox} \frac{q}{4\epsilon \epsilon_0 E}; \end{aligned} \quad (2)$$

$$\frac{\partial n_t}{\partial t} = -a \vec{\nabla} \left[n_t \left(1 - \frac{n_t}{N} \right) P_{\text{tun}} \frac{\vec{E}}{E} \right]; \quad (3)$$

$$\frac{\partial n_t}{\partial t} = -\frac{1}{e} \vec{\nabla} \vec{J}; \quad \vec{J} = e a n_t \left(1 - \frac{n_t}{N} \right) P_{\text{tun}} \frac{\vec{E}}{E}, \quad (4)$$

где J — плотность тока захваченных электронов,

$$\vec{\nabla} \vec{E} = -e \frac{n_t + N_{ox} - N}{\epsilon, \epsilon_0}, \quad (5)$$

где $D = \frac{1}{2} a_0^2 f_0 \exp \left(-\frac{E_{avac}}{kT} \right) \cosh \left(\frac{qEa_0}{2kT} \right)$ — коэффициент диффузии кислородных вакансий, здесь $f_0 = W_{\text{ph}}/h$ — частота колебаний кристаллической решетки; W_{ph} — энергия фононов; E_{avac} и E_{aox} — соответственно энергии активации движения вакансий и ионов; $a_0 = N_{\max}^{-1/3}$ — длина прыжка для частицы (иона или вакансий); E — электрическое поле; k — постоянная Больцмана; T — температура; $V_E = a_0 f_0 \exp \left(-\frac{E_{avac}}{kT} \right) \sinh \left(\frac{qEa_0}{2kT} \right) \left(1 - \frac{N}{N_{\max}} \right)$ — скорость дрейфа кислородных вакансий, где N_{\max} — максимальная концентрация кислород-

ных вакансий; h — постоянная Планка; q — заряд частицы; $D_{ox} = \frac{1}{2} a_0^2 f_0 \exp \left(-\frac{E_{aox}}{kT} \right) \cosh \left(\frac{qEa_0}{2kT} \right)$ — коэффициент диффузии ионов; $V_{Eox} = a_0 f_0 \exp \left(-\frac{E_{aox}}{kT} \right) \sinh \left(\frac{qEa_0}{2kT} \right) \left(1 - \frac{N}{N_{\max}} \right)$ — скорость дрейфа ионов; $P_{\text{tun}} = \frac{2\sqrt{\pi} \hbar W_t}{m^* a^2 Q_0 \sqrt{kT}} \exp \left(-\frac{W_{\text{opt}} - W_t}{2kT} \right) \times \exp \left(-\frac{2a\sqrt{2m^* W_t}}{\hbar} \right) \sinh \left(\frac{eEa}{2kT} \right)$ — частота туннелирования электронов между фонон-связанными ловушками; здесь e — заряд электрона; $Q_0 = \sqrt{2(W_{\text{opt}} - W_t)}$ — конфигурационная координата; W_{opt} и W_t — оптическая и термическая энергии ионизации ловушки; $a = N^{-1/3}$ — длина прыжка для электронов; m^* — эффективная масса носителя заряда; \hbar — приведенная постоянная Планка; E_g — энергия генерации пары ион—вакансия.

Уравнения для концентраций кислородных вакансий и ионов (1) и (2) взяты из работы [6]. Нестационарные уравнения непрерывности концентрации и плотности тока электронов (3) и (4) используются впервые.

Граничные условия для уравнения непрерывности концентрации вакансий (1) имеют вид

$$\left(D \frac{\partial N}{\partial z} - N V_E \right) \Big|_{z=0,d} = 0, \quad (6)$$

где z — координата перпендикулярная поверхности электрода.

Граничные условия для уравнения непрерывности концентрации ионов (2) имеют вид

$$\left(D_{ox} \frac{\partial N_{ox}}{\partial z} + N_{ox} V_{Eox} \right) \Big|_{z=0,d} = 0, \quad (7)$$

Граничное условие для уравнения непрерывности концентрации захваченных электронов (2) вблизи электрода с низким потенциалом запишем, как представлено в [7]:

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_t}{\partial t} \Big|_{z=0} = \\ = v_{inj} (N - n_t) - v_{ion} n_t - s \frac{\partial}{\partial z} \left[n_t \left(1 - \frac{n_t}{N} \right) P_{\text{tun}}^+ \right], \end{aligned} \quad (8)$$

где P_{tun}^+ — частота туннелирования электронов между фонон-связанными ловушками по направлению поля определяется выражением

$$\begin{aligned} P_{\text{tun}}^+(E, T) = \frac{\sqrt{\pi} \hbar W_t}{m^* a^2 Q_0 \sqrt{kT}} \exp \left(-\frac{W_{\text{opt}} - W_t}{2kT} \right) \times \\ \times \exp \left(-\frac{2a\sqrt{2m^* W_t}}{\hbar} \right) \exp \left(\frac{eEa}{2kT} \right). \end{aligned}$$

Такое условие учитывает инжекцию электронов из электрода, их ионизацию в металл и туннелирование в приэлектродную ловушку.

Степени инжекции и ионизации вычисляются с помощью следующих выражений:

$$v_{inj} = \int \frac{V_{out}}{2a^* \sqrt{2\pi kT}} \frac{\exp\left\{-\frac{(Q-Q_0)^2}{2kT} - \frac{4}{3} \frac{\sqrt{2m^*} [(-\epsilon)^{3/2} - (-qEa^* - \epsilon)^{3/2}]}{qF\hbar}\right\}}{1 + \exp\left(\frac{\Phi_n + \epsilon + qEa^*}{kT}\right)} dQ;$$

$$v_{ion} = \int \frac{V_{out}}{2a^* \sqrt{2\pi kT}} \frac{\exp\left\{-\frac{(Q-Q_0)^2}{2kT} - \frac{4}{3} \frac{\sqrt{2m^*} [(-\epsilon)^{3/2} - (-qEa^* - \epsilon)^{3/2}]}{qF\hbar}\right\}}{1 + \exp\left(-\frac{\Phi_n + \epsilon + qEa^*}{kT}\right)} dQ;$$

где $\Phi_n = E_C^d - E_F^m$ — разница между уровнем дна зоны проводимости диэлектрика и уровнем Ферми контакта, или $\Phi_n \approx \phi_m - \chi_d$ — разница между работой выхода из металла и сродством к электрону диэлектрика; $\epsilon = -Q_0(Q - Q_0) - W_{opt}$; a^* — расстояние между ловушками и металлом электрода; V_{out} — скорость электронов в электроде.

Граничное условие для уравнения непрерывности концентрации захваченных электронов (2) вблизи электрода с высоким потенциалом записывается аналогично условию (7), однако необходимо заменить знак в последнем члене правой части на противоположный а также поменять P_{tun}^+ на P_{tun}^- (путем замены E на $-E$ в последней экспоненте).

Численное моделирование системы уравнений (1)–(5) с граничными условиями (6)–(8) проведено с помощью программы на языке Python. При рас-

четах использовалась сетка с равномерным расположением узлов. Скалярное поле концентраций вакансий рассчитывается путем численного решения задачи Коши для уравнений (1) и (2) методом Эйлера.

Рассчитанные профили вакансий, концентрации и плотности тока электронов на границе с заземленным электродом ($z = 0$) при разных потенциалах U на противоположном электроде ($z = d$) использовались для построения вольт-амперной характеристики мемристора по формуле (3).

Для расчета свойств мемристора на основе оксида тантала Ta_2O_5 были выбраны следующие значения констант: $N_{max} = 10^{22} \text{ см}^{-3}$; $a_0 = 0,05 \text{ нм}$; $E_g = 1,66625 \text{ эВ}$; $E_{avac} = 0,65 \text{ эВ}$; $E_{aox} = 0,7 \text{ эВ}$; $m^* = 0,25m_e$; $W_t = 1,25 \text{ эВ}$; $W_{opt} = 2,5 \text{ эВ}$; $\phi_m = 4,25 \text{ эВ}$; $\chi_d = 3,2 \text{ эВ}$.

Результаты и обсуждение

На рис. 1 представлено сравнение профилей концентрации вакансий в оксидном слое мемристора при температурах $T = 550, 600$ и 650 К . На рисунке видно, что значительных различий кривых не наблюдается, с ростом температуры происходит небольшое увеличение концентрации вакансий.

Построена ВАХ на участке переключения мемристора из низкопроводящего в высокопроводящее состояние при постоянном электрическом поле, соответствующая нестационарному режиму резистивного переключения мемристора. Она рас-

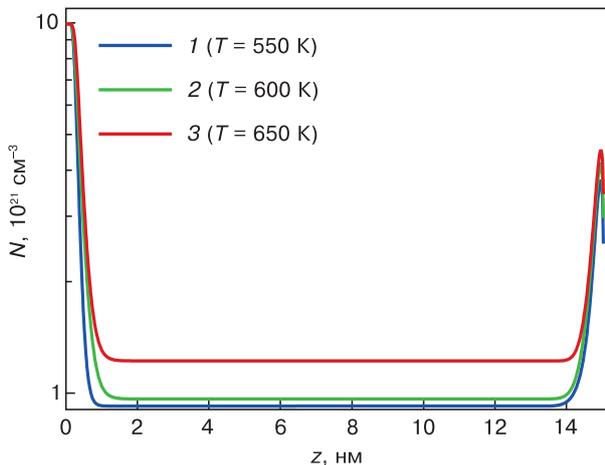


Рис. 1. Профиль концентрации вакансий по толщине оксидного слоя в зависимости от температуры оксидного слоя мемристора

Fig. 1. Profile of vacancy concentration across the thickness of the oxide layer depending on the temperature of the memristor oxide layer

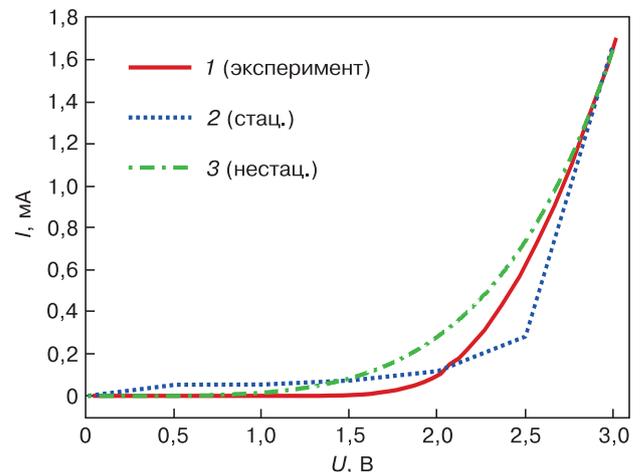


Рис. 2. Зависимость тока $I = J\pi D^2/4$ от напряжения U на аноде, описывающая резистивное переключение мемристора

Fig. 2. Dependence of current $I = J\pi D^2/4$ on voltage U at the anode, describing resistive switching of the memristor

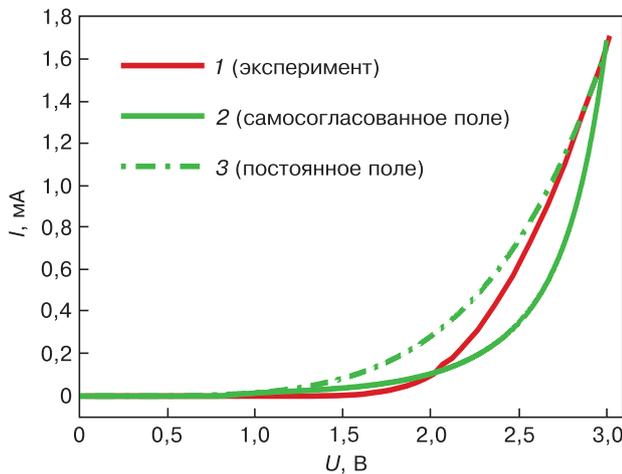


Рис. 3. Влияние самосогласованного электрического поля на вид кривой ВАХ мемристора

Fig. 3. The influence of the self-consistent electric field on the shape of the memristor I-V curve

положена ближе к экспериментальной кривой, чем кривая в случае стационарного режима (рис. 2). Расчетная ВАХ при самосогласованном поле расположена еще ближе к экспериментальной кривой относительно соответствующей кривой при постоянном поле (рис. 3).

На рис. 4 представлены полученные кривые ВАХ на участке переключения мемристора из низкопроводящего в высокопроводящее состояние при различных температурах оксидного слоя.

Из графика на рис. 4 видно, что температура мемристора, соответствующая эксперименту, равна 600 К. Совпадение экспериментальной и расчетной кривой говорит о возможности применения представленной модели для косвенного определения температуры оксида, не прибегая к использованию специализированных измерительных

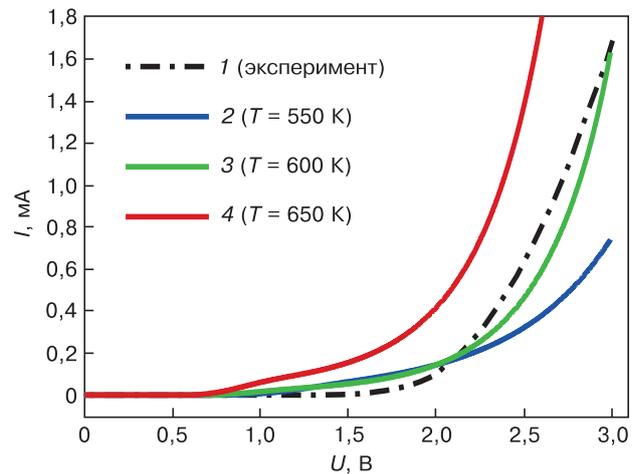


Рис. 4. Влияние температуры на вид кривой ВАХ мемристора

Fig. 4. The influence of temperature on the shape of the memristor I-V curve

инструментов, подбор которых затруднен из-за малых масштабов конструируемых мемристоров.

Закключение

Представлена нестационарная модель массопереноса зарядов в самосогласованном электрическом поле оксидного слоя мемристора. Полученная расчетная ВАХ расположена ближе к экспериментальной кривой по сравнению со стационарной моделью и нестационарной моделью с постоянным полем. Определено влияние температуры на распределение концентрации кислородных вакансий по толщине мемристора и вид кривой ВАХ на участке переключения мемристора из низкопроводящего в высокопроводящее состояние.

Библиографический список / References

1. Larentis S., Nardi F., Balatti S., David C. Gilmer D.C., Ielmini D. Resistive switching by voltage-driven ion migration in bipolar RRAM – Part II: Modeling. *IEEE Transactions on Electron Devices*. 2012; 59(9): 2468–4275. <https://doi.org/10.1109/TED.2012.2202320>
2. Kim S., Kim S.-J., Kim K.M., Lee S.R., Chang M., Cho E., Kim Y.-B., Kim Ch.J., Chung U.-I., Yoo I.-K. Physical electro-thermal model of resistive switching in bi-layered resistance-change memory. *Scientific Reports*. 2013; 3: 1680. <https://doi.org/10.1038/srep01680>
3. Kim S., Choi S.H., Lu W. Comprehensive Physical model of dynamic resistive switching in an oxide memristor. *Acsnano*. 2014; 8(3): 2369–2376. <https://doi.org/10.1021/nn405827t>
4. Basnet P., Pahinkar D.G., West M.P., Perini C.J., Graham S., Vogel E.M. Substrate dependent resistive switching in amorphous-HfO_x memristors: an experimental and computational investigation. *Journal of Materials Chemistry C*. 2020; 8(15): 5092–5101. <https://doi.org/10.1039/c9tc06736a>
5. Parit A.K., Yadav M.S., Gupta A.K., Mikhaylov A., Rawat B. Design and modeling of niobium oxide-tantalum

oxide based self-selective memristor for large-scale cross-bar memory. *Chaos, Solitons and Fractals*. 2021; 145(10–12): 110818. <https://doi.org/10.1016/j.chaos.2021.110818>

6. Busygin A., Udovichenko S., Ebrahim A., Bobylev A., Gubin A. Mathematical model of metal-oxide memristor resistive switching based on full physical model of heat and mass transfer of oxygen vacancies and ions. *Physica Status Solidi (A) Applications and Materials*. 2023; 220(11): 2200478. <https://doi.org/10.1002/pssa.202200478>

7. Chernov A.A., Islamov D.R., Pik'nik A.A., Perevalov T.V., Gritsenko V.A. Three-dimensional non-linear complex model of dynamic memristor switching. *ECS Transactions*. 2017; 75(32): 95–104. <https://doi.org/10.1149/07532.0095>

8. Kuzmichev D.S., Markeev A.M. Neuromorphic properties of forming-free non-filamentary TiN/Ta₂O₅/Ta structures with an asymmetric current-voltage characteristic. *Nanobiotechnology Reports*. 2021; 16(6): 804–810. <https://doi.org/10.1134/S2635167621060136>

Информация об авторах / Information about the authors

Бусыгин Александр Николаевич — канд. физ.–мат. наук, доцент, старший научный сотрудник кафедры прикладной и технической физики, Тюменский государственный университет, ул. Володарского, д. 6, Тюмень, 625003, Российская Федерация; ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-3439-8067>; e-mail: a.n.busygin@utmn.ru

Габдулин Бауржан Хайруллович — аспирант, младший научный сотрудник, Тюменский государственный университет, ул. Володарского, д. 6, Тюмень, 625003, Российская Федерация; ORCID: <https://orcid.org/0009-0000-2586-7469>; e-mail: baurzhan.gabdulin@gmail.com

Удовиченко Сергей Юрьевич — доктор физ.–мат. наук, профессор кафедры прикладной и технической физики, научный руководитель, Тюменский государственный университет, ул. Володарского, д. 6, Тюмень, 625003, Российская Федерация; ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3583-7081>; e-mail: udotgu@mail.ru

Шулаев Никита Анатольевич — аспирант, младший научный сотрудник, Тюменский государственный университет, ул. Володарского, д. 6, Тюмень, 625003, Российская Федерация; ORCID: <https://orcid.org/0009-0007-9673-0137>; e-mail: a.a.shulaev@utmn.ru

Писарев Александр Дмитриевич — канд. техн. наук, доцент кафедры прикладной и технической физики, старший научный сотрудник, Тюменский государственный университет, ул. Володарского, д. 6, Тюмень, 625003, Российская Федерация; ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-5602-3880>; e-mail: spcb.doc@utmn.ru

Ибрагим Абдулла Хайдар Абдо — канд. физ.–мат. наук, младший научный сотрудник, Тюменский государственный университет, ул. Володарского, д. 6, Тюмень, 625003, Российская Федерация; ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-1709-9882>; e-mail: abdulla.ybragim@mail.ru

Alexander N. Busygin — Cand. Sci. (Phys.–Math.), Associate Professor, Department of Applied and Technical Physics, University of Tyumen, 6 Volodarskogo Str., Tyumen 625003, Russian Federation; ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-3439-8067>; e-mail: a.n.busygin@utmn.ru

Baurzhan H. Gabdulin — Postgraduate Student, Junior Researcher, University of Tyumen, 6 Volodarskogo Str., Tyumen 625003, Russian Federation; ORCID: <https://orcid.org/0009-0000-2586-7469>; e-mail: baurzhan.gabdulin@gmail.com

Sergey Yu. Udovichenko — Dr. Sci. (Phys.–Math.), Professor, Department of Applied and Technical Physics, University of Tyumen, 6 Volodarskogo Str., Tyumen 625003, Russian Federation; ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3583-7081>; e-mail: udotgu@mail.ru

Nikita A. Shulaev — Postgraduate Student, Junior Researcher, University of Tyumen, 6 Volodarskogo Str., Tyumen 625003, Russian Federation; ORCID: <https://orcid.org/0009-0007-9673-0137>; e-mail: a.a.shulaev@utmn.ru

Alexander D. Pisarev — Cand. Sci. (Eng.), Associate Professor, Department of Applied and Technical Physics, Senior Researcher, University of Tyumen, 6 Volodarskogo Str., Tyumen 625003, Russian Federation; ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-5602-3880>; e-mail: spcb.doc@utmn.ru

Abdulla H. A. Ebrahim — Cand. Sci. (Phys.–Math.), Junior Researcher, University of Tyumen, 6 Volodarskogo Str., Tyumen 625003, Russian Federation; ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-1709-9882>; e-mail: abdulla.ybragim@mail.ru

*Поступила в редакцию 25.11.2024; поступила после доработки 20.12.2024; принята к публикации 23.12.2024
Received 25 November 2024; Revised 20 December 2024; Accepted 23 December 2024*