

Министерство образования и науки Российской Федерации
Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение
высшего образования
”ПЕТРОЗАВОДСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ”
Кафедра информационно-измерительных систем и физической электроники

На правах рукописи

Бутэ Ирина Владимировна

**ПРОЦЕССЫ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ И ДИФФУЗИИ В
ЭФФЕКТЕ РЕЗИСТИВНОГО ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ С
ПАМЯТЬЮ В ТОНКОПЛЕНОЧНЫХ ОКСИДНЫХ
СТРУКТУРАХ**

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Специальность 01.04.04 – Физическая электроника

Научный руководитель:
к.ф.-м.н., доцент
Борисков Петр Петрович

Петрозаводск 2016

Содержание

ВВЕДЕНИЕ.....	4
1 ЛИТЕРАТУРНЫЙ ОБЗОР	13
1.1 Разработанная эргонезависимая электронная память	13
1.2 Оксидная память на основе эффекта резистивного переключения	17
1.3 Эксперименты и модельные представления механизма ReRAM памяти на основе оксида никеля	20
1.4 Обзор физических параметров составляющих структуру	41
1.4.1 Никель	42
1.4.2 Оксид никеля.....	45
1.4.3 Платина	50
1.5 Перенос атомов, ионов, и их вакансий в NiO.....	50
1.6 Выводы по обзору	56
2 ДАННЫЕ ЭКСПЕРИМЕНТА. АНАЛИТИЧЕСКИЕ ОЦЕНКИ УПРОЩЕННЫХ МОДЕЛЕЙ.....	60
2.1 Экспериментальное исследование Pt/NiO/Pt структуры.....	60
2.2 Аналитические оценки процессов электроформовки и переключения	64
2.1.1 Стационарное распределение температуры	65
2.1.2 Нестационарное распределение температуры. Оценка времени растекания тепла в структуре (например, после пробоя)	69
2.1.3 Оценка времени разряда межэлектродной емкости при формовке	71
2.1.4 Упрощенная аналитическая модель распространения тепла с плавлением окружающего диэлектрика и расширением тонкого цилиндрического канала с током	71
2.1.5 Аналитические оценки диффузионного режима окисления.....	75
2.1.6 Выводы по аналитическим оценкам	81
3 МЕТОДИКА ЧИСЛЕННОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ.....	83
3.1 Постановка задачи. Исходные уравнения.....	83
3.2 Дискретизация расчетной области и производных. Граничные условия....	84
3.3 Разработка методики ускоренного (экономического) численного решения уравнения теплопроводности	89

3.4	Значения параметров составляющих структуру. Безразмерный вид параметров и переменных. Компьютерные переменные	96
4	МОДЕЛИРОВАНИЕ ПЕРЕХОДА В НИЗКООМНОЕ СОСТОЯНИЕ ПРИ ПРОБОЕ СТРУКТУРЫ Pt/NiO/Pt.....	99
4.1	Исходные предположения. Постановка задачи	99
4.2	Алгоритм счета.....	101
4.3	Результаты вычислений.....	104
4.4	Приближенные аналитические аппроксимации	112
4.5	Сравнение с упрощенными моделями и экспериментами.....	115
4.6	Выводы по главе 4.....	118
5	МОДЕЛИРОВАНИЕ ДИФФУЗИОННОГО МЕХАНИЗМА ОКИСЛЕНИЯ ПРОВОДЯЩЕГО КАНАЛА В ПЕРЕКЛЮЧАТЕЛЬНОЙ СТРУКТУРЕ С ПАМЯТЬЮ Pt/NiO/Pt	119
5.1	Исходные положения. Система уравнений	119
5.2	Алгоритм вычислений	121
5.3	Результаты вычислений.....	123
5.4	Выводы по главе 5.....	132
	ЗАКЛЮЧЕНИЕ	134
	ПРИЛОЖЕНИЕ 1.....	140
	ПРИЛОЖЕНИЕ 2.....	150
	ПРИЛОЖЕНИЕ 3.....	160
	1. Исходные уравнения. Аналитическое решение	161
	2. Метод верхней релаксации.....	162
	3. Метод переменных направлений	163
	4. Трехслойный явный метод «ромб».....	164
	5. Перемежающий метод	165
	6. Результаты вычислений	165
	ПРИЛОЖЕНИЕ 4.....	170
	СПИСОК ИСПОЛЬЗУЕМОЙ ЛИТЕРАТУРЫ:	175

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность работы

Развитие электроники в области хранения и обработки информации привело к появлению энергонезависимых микросхем памяти, которые практически объединяют основные требования к компьютерной памяти. В качестве лидирующего коммерческого продукта здесь на первый план выходит flash память, опирающаяся на использовании самого технологически продвинутого компонента современной микроэлектроники – полевого транзистора, где проводимостью канала управляет информационный электрический заряд, накопленный в дополнительном затворе с плавающим потенциалом. Другие реализации энергонезависимой памяти рассматривают ряд физических явлений: сегнетоэлектрический переход в наноразмерных конденсаторах, изменение намагниченности наноразмерных доменов, электрохимический рост проводящих нанокластеров, резистивное переключение.

Многолетние исследования возможности использования ферромагнитных и сегнетоэлектрических устройств показали наличие крупных проблем (например, деградация, обусловленная высокими значениями напряжений считывания, близкими к напряжениям записи и стирания информации для сегнетоэлектрических ячеек памяти, высокий ток записи и стирания информации для ферромагнитных устройств). Все это привело к тому, что наиболее перспективным явлением считается резистивное переключение в оксидах металлов и халькогенидных стеклах.

Резистивный переход в халькогенидных материалах определяется электрически стимулированным обратимым переходом из аморфного в кристаллическое состояние, с различными удельными сопротивлениями. Однако этот переход не позволяет достичь необходимых эксплуатационных характеристик. В частности, ток стирания информации достаточно высок и нет физической возможности его уменьшения.

Более перспективным выглядит резистивное переключение в оксидных пленках, которое реализуется в многочисленных оксидных семействах. Однако физические механизмы переключения не определены для эффективного использования явления. Для разработки универсальной памяти необходимы дополнительные исследования, позволяющие понять механизмы переключения, взаимодействия оксидов с материалами контактов, что позволит синтезировать новые оксидные пленки, оптимизировать существующие оксидные системы и осуществить smart material engineering резистивных ячеек памяти.

Изучение возможности использования оксидных пленок для разработки универсальной памяти проводится во всех крупных электронных компаниях и исследовательских центрах. Основная проблематика может быть условно разделена на два основных направления. Так в исследовательских лабораториях IBM и Intel исследования сосредоточены на применении биполярного переключения, когда для перехода из высокоомного в низкоомное состояния необходима поляризация структур напряжением различной полярности. Такой класс переключения наблюдается в достаточно сложных оксидах (многокомпонентные оксиды с перовскитоподобной структурой). Механизм переключения связывают с обратимым электронным стимулированием движения ионов кислорода, что приводит к модификации электрических свойств приэлектродного слоя.

Исследователи компании «Samsung» и «Hitachi» основные усилия направляют на изучение униполярного резистивного переключения, которое реализуется в простых бинарных оксидах с более простым управлением импульсами одной полярности. Среди оксидов, демонстрирующих этот эффект, большинство относится к группе оксидов переходных металлов (ОПМ): V, Ti, Nb, Ta, Ni, Zr и др. [1-2]. Текущий уровень разработок можно характеризовать как демонстрация прототипов однослойных cross-point memory структур с последовательно соединенными в местах пересечения резистивными ячейками и тонкопленочными диодами. Главной проблемой для задачи использования

резистивного переключения в оксидах металлов для разработки микросхем памяти является отсутствие хотя бы качественного понимания механизмов переключения. Для униполярного переключения принято считать, что резистивный переход обусловлен ростом и разрушением металлического канала (или каналов) в исходной оксидной матрице, но механизм образования и разрушения канала не определен.

Исходя из многочисленных экспериментов по реализации этого эффекта в оксидных системах, можно констатировать на данный момент только следующее. Шнурование тока в оксидной пленке при униполярном переключении – это неоспоримый факт, а для его создания принципиально необходим процесс их электрической формовки (ЭФ), который представляет собой диэлектрический пробой, то есть резкое, скачкообразное изменение проводимости оксидного слоя при ограничении проходящего тока. ЭФ передает исходной структуре со свойствами полупроводника или изолятора (высокоомное состояние «OFF») свойства структуры с металлическим поведением проводимости (низкоомное состояние «ON»), в котором в последующем должно наблюдаться переключение с памятью. Процессу образования проводящего канала при ЭФ предшествуют предпробойные эффекты [2]: электро- и термогенерации дефектов в кристалле, электронные переходы и ударная ионизация, которые ведут к созданию каналов электронного тока – стримеров со временем развития менее 0,7 нс [3]. Дальнейший (термический) этап ЭФ, то есть процесс расширения проводящего канала, определяемый плотностью энергии, рассеиваемой в результате пробоя на данный момент ни качественно, ни тем более количественно не разработан. Это касается и непосредственно процесса переключения: механизм разрушения и восстановления проводящего канала не известен. Существуют только ряд модельных (полукачественных) представлений (см. обзор, разд.1.3) о определяющем влиянии процессов диффузии (кислорода, металла и вакансий кислорода и металла) на этот процесс.

Таким образом, адекватной модели процесса униполярного резистивного переключения, разработке которой посвящена данная работа, на сегодняшний момент не существует, а решение этой задачи позволит помочь спрогнозировать характеристики приборов на начальной стадии их разработки. Именно поэтому актуально и необходимо не только исследование и совершенствование существующих устройств ReRAM, поиск новых материалов и методов из создания, но и изучение явления лежащего в основе работы данных структур.

Цель работы:

Цель работы заключалась в теоретическом исследовании эффекта униполярного резистивного переключения с памятью в МОМ структуре Pt/NiO/Pt с помощью численного моделирования процессов электрической формовки и перехода из высокоомного в низкоомное состояние структуры на основе полученных экспериментальных данных.

В ходе работы были поставлены и решены следующие **задачи:**

1. Разработка модели электрической формовки, базирующейся на эффекте образования канала за счет плавления окисла NiO при пробое Джоулевым нагревом и прихода никелевых ионов в канал за счет подвижности в жидкости в сильном электрическом поле к никелевым фрагментам.

2. Разработка и тестирование численного алгоритма моделирования с переменным временным шагом при расчете диффузии, температуры и потенциала с периодическим уточнением температуры по итерационной схеме. Составление программы расчета на языке СИ.

3. Моделирование процесса электрической формовки в МОМ структуре Pt/NiO/Pt на основе предложенной модели. Определение пространственно-временных параметров образования канала при разных формирующих напряжениях и емкостях структуры.

4. Разработка модели перехода (SET) из «ON» в «OFF» состояние, базирующейся на механизме теплоиндуцированной диффузии никелевых

вакансий за счет джоулева нагрева проводящего канала и его окружения переключающим током.

5. Разработка и тестирование численного алгоритма моделирования механизма теплоиндуцированной диффузии проводящего канала в «OFF» состоянии. Составление программы расчета на языке СИ шарп.

6. Моделирование процесса SET в MOM структуре Pt/NiO/Pt на основе предложенной модели. Определение пространственно-временных параметров разрушения проводящего канала при разных переключающих токовых режимах.

7. Сравнение полученных результатов моделирования с экспериментальными данными, выводы по разработанным моделям эффекта формовки и униполярного резистивного переключения с памятью в MOM структуре Pt/NiO/Pt.

Научная новизна работы заключается в том, что впервые:

1. Предложены и разработаны механизмы образования и разрушения канала в процессах электрической формовки и переключения в оксидных структурах;

2. Предложена и численно реализована наиболее полная математическая модель этих механизмов на основе теплофизических и электрических процессов ионного и электронного транспорта (в гидродинамическом приближении);

3. Рассмотрены и проанализированы пространственные и временные характеристики проводящего канала в ходе его образования и разрушения в процессах электрической формовки и переключения в оксидных структурах с памятью при различных токовых режимах;

4. В ходе реализации программы моделирования разработан и протестирован абсолютно устойчивый высокоскоростной явно-неявный перемежающийся метод прохода счетной области.

Научно-практическая значимость заключается в том что, впервые построена адекватная модель процесса униполярного резистивного переключения и проведен полный (неупрощенный) расчет этого эффекта с оценкой основных характеристик для помощи экспериментаторам спрогнозировать синтез и реализацию ячеек памяти на основе оксидов некоторых металлов на начальной стадии их разработки.

Положения, выносимые на защиту:

1. Температура в канале при протекании тока существенно превышает температуру плавления NiO, имеет неоднородный по толщине структуры характер, а установившееся сечение проводящего канала сужается к электродам, и определяется максимальным разрядным током, существенный вклад в который вносит паразитная емкость.

2. Существует минимальный радиус канала $\sim 1,6$ нм и разрядный ток $0,1 \div 0,2$ мА определяемые развитием стримеров при пробое, когда плавление оксида NiO не достигается за счет эффективного отвода тепла.

3. Сильная неоднородность температуры по радиусу и толщине структуры при протекании тока в состоянии «ON» приводит к еще большей неоднородности коэффициента диффузии. В результате диффузионного окисления никелевыми вакансиями канал имеет вид перетяжки его центральной части, утолщаясь к электродам, при средней температуре канала 900 К–1000 К.

4. Максимальное время сквозного окисления канала, а, следовательно, и время перехода в «OFF» состояние составляет не менее миллисекунды и резко уменьшается на порядок при увеличении порогового тока на $\sim 10\%$.

5. На процесс перехода в «OFF» состояние оказывает влияние условий формирования предельных токов перехода (подача импульса напряжения на структуру, задание тока внешней цепью или подача напряжения через балластное сопротивление). Во всех случаях необходимо обеспечить пороговый ток через структуру при ее нагретом состоянии, когда ее

сопротивление увеличивается в $2\div 2,5$ раза при средней температуре в канале около 1000 К.

Апробация работы

Осуществлена в публикациях, докладах и выступлениях на следующих конференциях: XXIV «Современная химическая физика» (г. Туапсе, 2012), «ФАГРАН-2015» (г. Воронеж, 2015).

Публикации:

По результатам работы опубликовано три статьи в рецензируемых журналах (все статьи опубликованы в журналах из списка, рекомендованного ВАК РФ), тезисы/доклады на трех международных и всероссийских конференциях.

Структура и объем

Содержание работы изложено на 187 страницах, включающих 139 страниц основного текста, 54 рисунка, 12 таблиц. Текст состоит из введения, пяти глав, заключения, четырех приложений и списка литературы, содержащего 137 наименований.

Краткое содержание работы

Во **введении** обоснована актуальность темы исследования, сформулированы цели и задачи работы, показана научная новизна и практическая значимость результатов. Изложены основные положения, выносимые на защиту, приводится список публикаций и сведения об апробации работы.

В **первой главе** выполнен обзор российских и зарубежных литературных данных, имеющих по данной тематике в настоящее время. Глава включает в себя шесть разделов. В первом разделе приведен обзор существующих видов разработанной энергонезависимой электронной памяти. Второй раздел представляет собой описание структуры и принципа работы оксидной памяти на основе эффекта резистивного переключения. В третьем разделе описаны

эксперименты и модельные представления механизма ReRAM памяти на основе оксида никеля. В четвертом разделе приведен обзор физических параметров составляющих структуру (Ni, NiO, Pt). В пятом разделе рассмотрен перенос атомов, ионов, и их вакансий в NiO. В шестом разделе представлены выводы по обзору.

Во **второй главе** изложены данные о проведенных экспериментальных исследованиях по синтезу и переключению Pt/NiO/Pt структуры, а также приведены аналитические оценки упрощенных моделей исследования. В первом разделе описано экспериментальное исследование Pt/NiO/Pt структуры. Во втором разделе приведены аналитические оценки нескольких упрощенных моделей, а также сделаны оценки некоторых режимов. Глава состоит из двух разделов.

В **третьей главе** представлена методика численного моделирования. Глава состоит из четырех разделов. В первом разделе изложена постановка задачи моделирования и представлены исходные уравнения. Во втором разделе описана дискретизация расчетной области и производных, а также поставлены граничные условия. В третьем разделе описана разработка методики ускоренного (экономического) численного решения уравнения теплопроводности. В четвертом разделе приведены значения параметров составляющих структуру, безразмерный вид параметров и переменных, участвующих в моделировании, а так же описаны компьютерные переменные.

Четвертая глава посвящена моделированию перехода в низкоомное состояние при пробое структуры Pt/NiO/Pt. В первом разделе приведены исходные предположения, постановка задачи моделирования. Во втором разделе описан алгоритм счета. Далее, в третьем разделе представлены результаты вычислений. В четвертом разделе приведены приближенные аналитические аппроксимации. В пятом разделе изложено сравнение вычислений с упрощенными моделями и экспериментами. И в шестом разделе приведены выводы по данной главе.

Пятая глава посвящена моделированию диффузионного механизма окисления проводящего канала в переключающей структуре с памятью Pt/NiO/Pt. Глава состоит из четырех разделов. В первом разделе представлены исходные положения моделирования, система уравнений. Во втором разделе описан алгоритм вычислений. В третьем представлены результаты вычислений. В четвертом сделаны выводы по главе.

В заключении изложены основные результаты работы и выводы.

Благодарности

Автор, выражает благодарность профессору **Сысуну В. И.** и научному руководителю **Борискову П. П.** за помощь, ценные и критические замечания, предложения, выдвигаемые в процессе выполнения исследований, а также профессору **Стефановичу Г. Б.** за предложение и обсуждение темы исследований, и реализацию эксперимента.

1 ЛИТЕРАТУРНЫЙ ОБЗОР

В данной главе представлены результаты анализа публикаций, касающихся разработки и созданию устройств энергонезависимой электронной памяти. Основное внимание в обзоре уделено разработкам ячеек памяти на основе униполярного резистивного переключения, а также современным представлениям о физических принципах их работы и характеристикам: быстродействие, надежность хранения информации, операционные напряжения и т. д. Также представлены основные физические характеристики материалов переключаемых МОМ структур на основе оксида никеля, требуемых для постановки задачи и проведения численного моделирования.

1.1 Разработанная энергонезависимая электронная память

Устройства энергонезависимой памяти - системы для долгосрочного хранения информации, где главным требованием является независимость от источника. То есть такие устройства в отличие от динамической памяти могут сохранять логические состояния достаточно долгое время (месяцы, годы, десятки лет) после отключения питания. Как правило, энергонезависимая память обладает относительно низкой скоростью доступа и содержит в своем составе различные механические компоненты (устройства вращения носителя информации, устройства позиционирования системы считывания). Это обуславливает недостаточную надежность подобных устройств, что особенно проявляется при увеличении поверхностной плотности носителей информации.

1. Память со случайным доступом на основе материалов с изменением фазового состояния

Материалы с изменением фазового состояния относятся к классу, для которых характерны два фазовых состояния со значительно различающимися свойствами: аморфное с низким оптическим коэффициентом отражения и высоким электрическим сопротивлением и кристаллическое с сильным

отражением и низким сопротивлением [4-5]. Например, $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (GST) или Sb_2Te допированный Ag и In (AIST). В устройствах электронной памяти процесс фазового перехода происходит под действием джоулева тепла с временем кристаллизации менее чем за 100 нс и перепадом величины электрического сопротивления до 5-ти порядков. Под действием импульсов электрического тока различной мощности происходят кристаллизация фазоменяющегося материала (set операция), при разогреве выше температуры кристаллизации, или переход материала в аморфное состояние после плавления и последующего быстрого охлаждения (reset операция - более короткого импульса большей мощности).

2. Магниторезистивная память

В основе магниторезистивной памяти MRAM (Magnetoresistive Random Access Memory) лежит эффект туннельного магнетосопротивления [6-7]: зависимость спин-поляризованного тока через контакт «магнетик – диэлектрик - магнетик» от намагниченности слоев магнитных материалов. Запись информации в ячейку памяти MRAM путем пропускания тока с созданием соответствующего магнитного поля обеспечивает простоту реализации на основе двух пересекающихся проводов, разделенных туннельным контактом. Преимущества MRAM – это высокая скорость записи, совместимость с КМОП и высокая устойчивость ввиду отсутствия какого-либо известного механизма деградации магнитного переключения [8]. Недостатком MRAM являются токи утечки через соседние ячейки, требующие разделения дополнительными элементами, а также относительно небольшое отношение сопротивлений в открытом и закрытом состоянии [9], что определяет возможность ошибочной записи. Это требует некоторого усложнения конструкции за счет введения дополнительных ферро-антиферромагнитных слоев, что ведет также к необходимости усложнения и самого процесса записи («считывание перед записью» [9]). Однако, наиболее серьезная проблема – это достаточно большой ток необходимый для записи информации в ячейку (более 1 мА), причем при уменьшении размеров эта величина практически не изменяется.

3. Сегнетоэлектрическая память

Энергонезависимая память FeRAM (ferroelectric random access memory) основана на сегнетоэлектрическом эффекте, заключающейся в возникновении спонтанной поляризации ряда материалов (сегнетова соль - $\text{KNaC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, перовскиты - BaTiO_3 , PbTiO_3 , LiNbO_3 , $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}$ или PZT и др.) даже в отсутствие внешнего электрического поля. Ячейка FeRAM представляет собой конденсатор: прослойку сегнетоэлектрического материала между двумя металлическими электродами [10].

Детектирование сегнетоэлектрического конденсатора заключается в приложении импульса напряжения, переводящего устройство в одно из предельных состояний его петли гистерезиса, что будет создавать токовый пик, величина которого зависит от начального состояния. Напряжение считывания, создаваемое зарядкой этим током емкости разрядной шины далее сопоставляется с опорным напряжением [11]. Каждая операция считывания сопровождается последующей операцией перезаписи, что уменьшает количество циклов переключения (до 10^{16} циклов) [12]. Также отметим сложности технологического плана: относительно высокая температура синтеза, необходимость строгого контроля отсутствия дефектов и загрязнений и т.д. [13-15].

Несмотря на это, FeRAM – в перспективе одно из конкурентоспособных элементов памяти на рынке благодаря высокой скорости (время переключения – порядка 20 нс), малой потребляемой мощности, малым рабочим напряжениям и возможности непосредственной интеграции в кремниевую КМОП электронику.

4. Флэш-память (NAND, NOR)

Наиболее известная и востребованная на рынке электронной памяти - флэш-память с захватом заряда NOR и NAND. Она организована на основе полевого транзистора (КМОП) с плавающим затвором и схематически показана на рисунке 1.1. При положительном значении напряжения на управляющем затворе транзистор находится в открытом состоянии (инициализация ячейки

памяти), что соответствует логическому нулю. Если на плавающий затвор поместить избыточный отрицательный заряд, то он не даст образоваться каналу проводимости, то есть транзистор будет находиться в закрытом состоянии (при подаче положительного напряжения на управляющий затвор, отрицательный заряд скомпенсирует создаваемое управляющим затвором электрическое поле). Таким образом, наличие или отсутствие заряда на плавающем затворе однозначно определяет состояние транзистора (открыт ON или закрыт OFF).

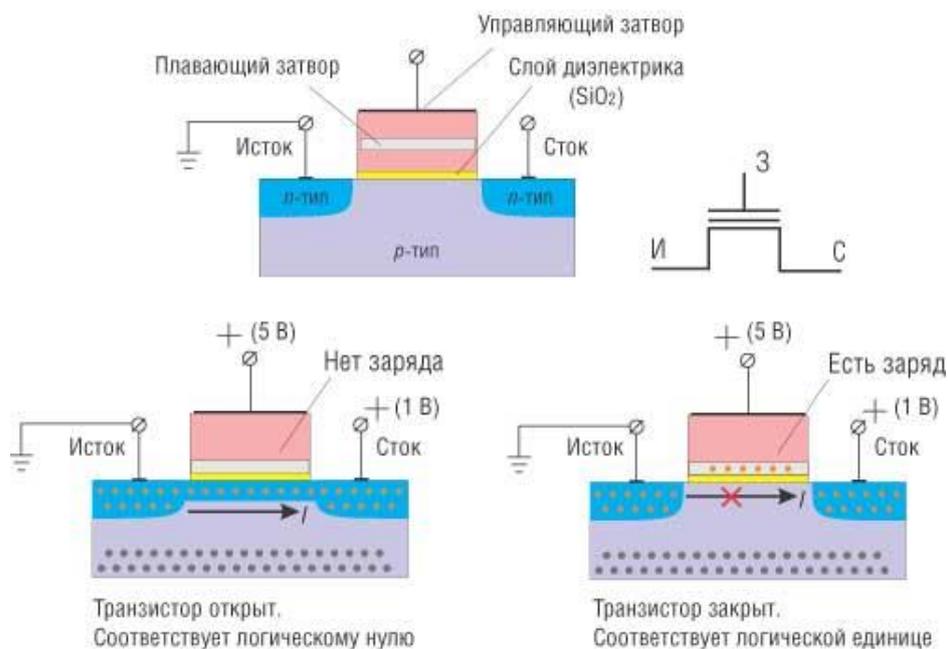


Рисунок 1.1-Устройство транзистора с плавающим затвором и чтение содержимого ячейки памяти [16].

По методу встраивания заряда в плавающий затвор различают два типа флэш-памяти: инъекции горячих электронов для устройств NOR памяти или метод туннелирования Фаулера-Нордхейма для устройств NAND. По архитектуре элементов памяти NAND упаковывается более плотно, а NOR предоставляет более быстрый произвольный доступ. Так чтение и запись в NOR памяти 0,18–0,47 Мб/с и 750–900 мс, соответственно [17-18]. В комбинации из быстрого чтения и медленной записи NOR используется в сотовых телефонах, компьютерах и других устройствах для загрузки программного кода.

В NAND памяти очень маленькое значение тока, необходимое для процесса туннелирования по Фаулеру-Нордхайму через канальную область, позволяет записывать параллельно сразу многие биты, что в результате дает приемлемую общую скорость записи 8 Мб/с [17]. NAND память лучше всего пригодна для применений, в которых в первую очередь необходим доступ блоками, как, например, носители цифровой музыки, фотографий и видео.

Современные устройства флэш-памяти обладают рядом недостатков, существенно сдерживающих её дальнейшее развитие. При уменьшении толщины подзатворного диэлектрика он теряет свои функциональные качества, что обуславливает трудности масштабирования ячеек флэш-памяти. Уменьшение плавающего затвора NAND памяти создает неприемлемую интерференцию между смежными запоминающими устройствами, когда расстояние между числовыми шинами сжимается до 40 нм и менее [19-21]. Таким образом, при масштабах менее 20 нм, современные ячейки флэш-памяти сталкиваются с серьезными фундаментальными и инженерными трудностями [19-21, 22-23].

1.2 Оксидная память на основе эффекта резистивного переключения

Создание универсальной энергонезависимой памяти, сочетающей в себе простоту реализации и принципа работы, и соответственно, компактность ее архитектуры, а также быстроту чтения-записи, одно из важных направлений современной электроники. Одним из кандидатов на такую универсальную память является резистивная память произвольного доступа (Resistive Random Access Memory, ReRAM, RRAM), основанная на эффекте резистивного переключения. Схематический вид ячейки памяти ReRAM представлен на рисунке 1.2.

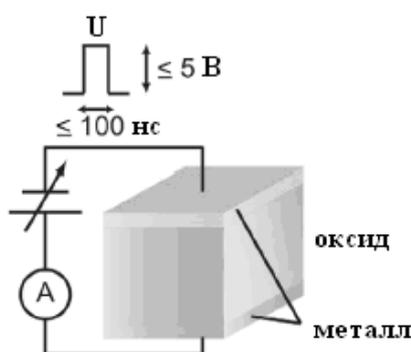


Рисунок 1.1 – Схематический вид ячейки ReRAM с сэндвич структурой, в которой оксидный полупроводник или изолятор помещен между двумя электродами [24]

Такую ячейку можно классифицировать как сэндвич структуру, в которой активный оксидный слой (оксид) с резистивным переключением расположен между двумя металлическими электродами (металл). При подаче импульса напряжения на верхний электрод происходит переключение ячейки между двумя устойчивыми во времени состояниями высокоомным и низкоомным, таким образом, происходит запись логического «0» и «1» в ячейку памяти.

Впервые возможность применения эффекта резистивного переключения для создания устройств электронной памяти было предложено 1967 году в работе [25], однако первое экспериментальное подтверждение такой возможности появилось только в 2002 году в работе [26]. Ячейка памяти ReRAM синтезирована на основе перовскита, переключение проводилось с помощью импульсов напряжения длительностью 10 наносекунд и амплитудой менее 5 вольт. Дальнейшее развитие ReRAM было направлено в первую очередь на поиск более простых оксидных материалов, реализующих этот эффект. Резистивная память на основе бинарного оксида (NiO) впервые была продемонстрирована группой исследователей из института технологий Samsung в 2004 году [27]. Впоследствии прототипы ReRAM были продемонстрированы с помощью MOM структур на основе других оксидов SiO_x [25], Al_2O_3 [28], Nb_2O_5 [29], CuO_x [30], HfO_x [31-32], ZnO [33], TiO_2 [34-35]. Тем не менее, NiO с момента открытия [27] остается наиболее исследуемым материалом ReRAM (см. сл. раздел), чему посвящено исследование данной работы.

На сегодняшний момент уже существуют образцы элементов ReRAM, которые значительно опережают флэш-память по быстродействию и энергопотреблению. Технической проблемой остается стабильность работы и недостаточно большое количество циклов переключения оксидных ReRAM. Тем не менее, в работе [32] авторами продемонстрирован рабочий элемент памяти ReRAM размером $10 \times 10 \text{ нм}$ на основе оксида гафния (HfO_x) с количеством циклов более 10^7 , а отношение сопротивлений высокоомного и низкоомного состояний более 50.

Как уже отмечалось во введении, разработка ReRAM и ее продвижение на рынке тесно связано с проблемой перехода к 3D интеграции, который невозможен в современном планарном процессе кремниевой технологии. Например, многочисленные и дорогостоящие исследования показали, что flash технология, основанная на использовании стандартного (но практически безальтернативного) планарного процесса (CMOS) кремниевой технологии, не позволяет реализовать SCM 3D память.

Наиболее перспективной 3D технологией в данный момент считается многослойная конструкция памяти (stackable memory), каждый слой которой организован в виде системы перпендикулярных металлических проводников, в точках пересечения которых расположены ячейки – хранители информации (cross-point memory) (рис.1.3). Необходимо отметить, что такая конструкция памяти выдвигает на первый план требование использования низкотемпературных технологических процессов неприемлемые для стандартной (CMOS) кремниевой технологии.

Оптимальная структура cross-point памяти должна включать в состав отдельной ячейки памяти два элемента: собственно компонент, хранящий информацию и последовательно включенный компонент доступа, исключая взаимное влияние соседних ячеек в открытом и закрытом состояниях. В настоящий момент в качестве компонента доступа рассматриваются тонкопленочные диодные структуры с выпрямлением.

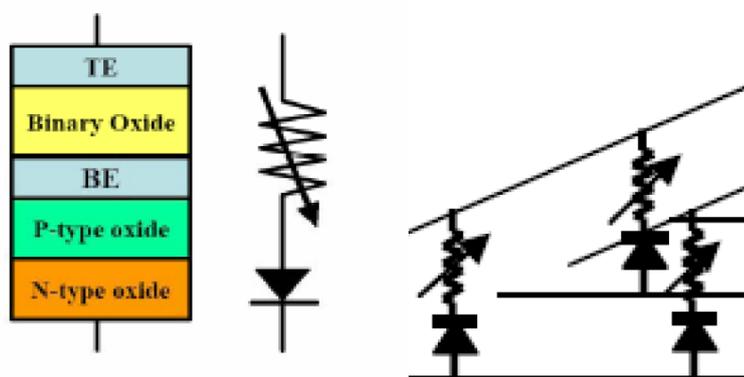


Рисунок 1.2 – Оксидно-металлический диодный селектор NiO/TiO₂, интегрированный в RRAM 3D память. Бинарный аморфный оксид (Binary Oxide) – слой CuO_x или NiO_x (x~2)

В этом случае cross-point memory обозначается как 1D1R память, что показывает основную схемотехническую структуру ячейки памяти. Структура ячейки, в которой в качестве элемента доступа используется транзистор, обозначается 1T1R.

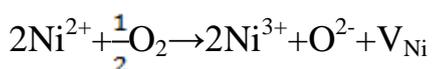
В целом, учитывая сложность процессов создания элементов памяти, характеристики и особенности их работы, простоту масштабирования и возможность создания многослойных структур в будущем (3D интеграция), память на основе эффекта резистивного переключения ReRAM является одной из самых перспективных технологий для нового вида «универсальной» памяти. Изучение механизмов её работы, поиск новых материалов обладающих данным эффектом и разработка новых методов их создания являются актуальными и необходимыми задачами для дальнейшего прогресса данной технологии.

1.3 Эксперименты и модельные представления механизма ReRAM памяти на основе оксида никеля

Наиболее исследуемым объектом оксидной ReRAM как в плане перспектив технических разработок, так и развития модельных представлений механизма памяти являются MOM структуры на основе оксида никеля.

NiO обладает свойством полупроводника с частично заполненной d – зоной никеля с зазором (запрещенной зоной) ~ 1,3 эВ. При напылении пленки NiO в большом количестве образуются никелевые внедрения и никелевые вакансии [36-38]. Никель легко отдает электрон в зону проводимости, кроме того никелевые атомы могут объединяться в металлические фрагменты с размерами в несколько нанометров, между которыми может происходить электронная прыжковая проводимость [25].

Кислород в NiO образует Ni^{3+} и никелевые вакансии [39]:



Ni^{3+} образует полярные дырки, которые могут перескакивать от одной вакансии Ni к другой, создавая проводимость p-типа.

При образовании NiO с недостатком кислорода никелевые внедрения образуют множество никелевых фрагментов [40]. Такой металлизированный оксид никеля либо сразу, либо в сильном электрическом поле необратимо переходит в высокопроводящее состояние.

Эффект переключения структуры на основе NiO возникает примерно при равенстве избытка кислорода и никеля. С увеличением кислорода возникает большая стабильность и расширение диапазона высокоомного состояния «OFF» и уменьшение стабильности и сужения диапазона низкоомного состояния «ON» [41]. При большой концентрации кислорода, когда концентрация Ni^{3+} доходит до 5% общего количества никеля, устойчивый переход в низкоомное состояние не происходит [39].

Эффект резистивного переключения на NiO пленках наблюдали еще в 60х годах [42-44]. Одним из первых полных исследований эффекта переключения на тонких пленках NiO является работа [42], где помимо результатов эксперимента предложена модель явления и сделаны теоретические оценки процессов перехода из одного состояния в другое.

Эксперимент проводился на достаточно толстых пленках ($2 \div 30$ мкм) NiO, получаемых окислением кислородом пластины никеля (толщина 0,015 дюйма,

0,25_{in}×0,25_{in}) при высоких температурах. Сопротивление NiO при $T=300\text{K}$, $\rho\sim 10^8$ Ом·см и сильно падает с температурой по экспоненциальному закону: $\rho = \rho_0 \exp\left(\frac{\varepsilon}{2kT}\right)$; ε - несколько эВ. Серебряный контакт имел 1/16 дюйма в диаметре спекаемый с NiO в азотной атмосфере ~ 680 °С, 10 мин. Кроме того, применялись так же напыленные контакты диаметром 1/25 дюйма, толщиной 0,1 дюйма. На постоянном токе сопротивление «OFF» более 50 МОм. Сопротивление «ON» не зависело от площади и типа контакта с электродом (серебро, золото, Al) и от частоты (0÷50 МГц). При снижении температуры сопротивление «ON» уменьшается (от 44 Ом при $T = 300$ К до 27 Ом при $T=-195$ °С жидкий азот). Положительный ход зависимости сопротивления от температуры указывает на металлический характер как фрагмента чистого никеля.

Наличие проводящего канала в «ON» состоянии подтвердилось смещением игольчатого вольфрамового зонда вдоль пленки NiO, когда избирательно обнаруживалась резкое увеличение проводимости в “слабых” местах пленки (дефекты, дислокации, проколы пленки NiO).

Включение осуществлялось одиночным импульсом длительностью ~ 10 мкс и напряжением 1000 В. Отметим, что при меньших напряжениях переключение необходима последовательность импульсов, после чего достаточно $U = 200$ В и $t_U = 40$ мкс.

Выключение подробно исследовалось при толщине пленки 26 мкм. Переход из «ON» в «OFF» осуществляется увеличением тока до ~ 30 мА или более (чем больше ток, тем возможно меньше длительность импульса).

Авторы предполагают, что механизм переключения основан на локальном сильном электрическом поле и высокой температурой (1000÷2000°С), при котором происходит миграция атомов никеля по дефектам. Также авторы считают, что химическое разложение NiO на Ni и O недостаточно для описания переключения. Предполагаемый механизм – плавление никелевого канала и уход атомов Ni по дислокациям.

На основе уравнения теплопроводности в цилиндрической геометрии рассчитана зависимость времени переключения от проходящего тока в предположении, что ток увеличивает температуру последовательно от центра к краям канала (электродам), где $T=T_0$ – температура окружающей среды. Расчетная кривая более крутая, чем экспериментальная (рис.1.4).

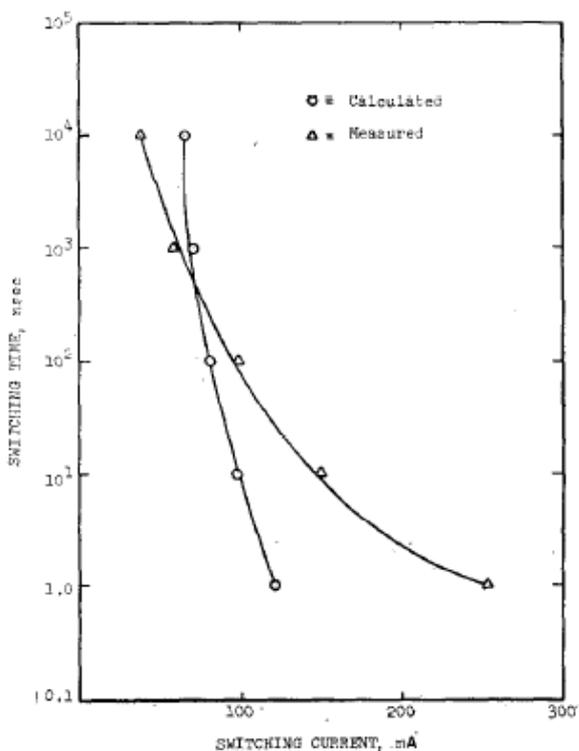


Рисунок 1.3 – Зависимость тока переключения от времени

К недостаткам модели можно отнести неучет изменения термодинамических параметров (теплопроводность, теплоемкость, теплоемкость) при высоких температурах, теплоты плавления никеля, а также очевидные артефакты, что радиус канала искусственно завышен и его длина принималась меньше толщины пленки. Тем не менее, сама постановка задачи является несомненным “шагом вперед” в теоретическом исследовании резистивного переключения в МОМ структурах и ее базовые положения использованы в данной работе:

1) В режиме «ON» ток проходит через узкий канал с металлической проводимостью, образуемый из Ni уже имеющегося в NiO в виде дефектов под действием сильного электрического поля за счет роста микроостровков Ni;

2) Переход в режим «OFF» происходит за счет нагрева канала из Ni до расплавления и уходом (диффузии) атомов Ni (нагрев током более 30 мА).

Природа канала переключения являлось основной темой ряда экспериментальных и теоретических работ фактически сразу после обнаружения этого эффекта в оксиде никеля.

Хикмотт [29,43] предложил, что канал образуется внедренными неподвижными атомами Ni, находящиеся на середине энергетической запрещенной зоны и ионизирующихся приложенным электрическим полем. То есть канал является не чисто металлическим Ni, а скорее NiO_x с проводимостью с проводимостью квазиметаллического типа.

Симонс [25] высказал точку зрения, что атомные дефекты в оксидной пленке могут возникнуть в процессе формовки за счет инжекции в сильном электрическом поле анодного материала через дефекты поверхности (поры, дислокации). Подобная ситуация имеет место в оксидах неметаллов (SiO) подробно исследованных в [45-47]. Модель на основании этих исследований предложена и развита в [48,49], а ее положения заключаются в следующем.

1) Синтезированный диэлектрик содержит пустоты и нарушения стехиометрии (особенно при напылении). В результате после формовки происходит смещение элементарных ячеек (~ 1 нм) материала анода и в диэлектрике образуются островки металла. Электроны могут туннелировать между островками металла с рассеянием на ловушках из атомов кислорода. Наличие ступенчатого туннелирования электронов подтверждается эффектом эмиссии и электролюминисценции электронов [50,51]. Рост металлических фрагментов в оксидных пленках при подаче напряжения оценивался в [52] (~1 нм в диаметре с числом $5 \cdot 10^4 \text{ мм}^{-2}$).

Подтверждение проникновения материала анода в оксидный слой при подаче напряжения получено в [49] при напылении на тонкий анодный слой с поданным напряжением дополнительного анодного материала (золота). Уже при напылении 0,1 нм золота ток ступенчато увеличивается до низкоомного состояния. Рост тока объясняется заполнением свежим анодным материалом

повреждений поверхности структуры и проникновением фрагментов металла внутрь структуры.

2) Перевод из состояния «ON» в состояние «OFF» осуществляется коротким ~ 1 мкс мощным импульсом, когда эффективность захвата электронов в ловушки высока, а энергию для покидания ловушек электроны не успевают получить. При положении «OFF» небольшие напряжения недостаточны для покидания ловушек электронами.

Перевести из «OFF» в «ON» можно продолжительным импульсом ~ 1 мс с достаточным напряжением, когда уход электронов превышает их захват. Все объясняется зависимостью сечения захвата электронов в ловушки от напряжения. Сначала медленный, а затем все более быстрый рост сечения захвата (уменьшения длины пробега) с ростом напряжения (эффект Шоттки).

Эффект захвата в ловушки сильно возрастает при $U > \sim 3V$. При напряжении менее $\sim 1,5$ В этот эффект слаб и прибор стабильно сохраняет свое состояние. Перевести из «ON» в «OFF» можно бомбардировкой электронами 10КэВ, которые могут захватываться в ловушки [49,53].

В работе [41] поликристаллическая NiO пленка толщины 150 нм исследовалась при различном соотношении Ni и O. NiO пленка наносилась методом реактивного магнетронного распыления при добавке к Ar (5 мтор) 3 ÷ 20% кислорода на платиновую подложку. Затем наносился верхний Pt электрод 100 нм толщины и 300 мкм диаметром. Окислы Ni₂O₃ и NiO₂ рентгеновский дифракционный анализ не обнаружил. Постоянная решетки NiO (подобно NaCl) с ростом кислорода увеличивалась за счет появления никелевых вакансий (пустот). Так как NiO - полупроводника *p*-типа с дефицитом металла [36,37], при напылении с 20% кислорода дает концентрация никелевых вакансий $\sim 6,75 \cdot 10^{20}$ см⁻³, т.е. получаем сильно легированный *p*- полупроводник.

С другой стороны, при низком содержании кислорода получаем смесь металлического никеля и NiO. Таким образом, при 5% кислорода количество никелевых дефектов и вакансий примерно равны, а при 20%, количество вакансий существенно выше [38].

Вольтамперные характеристики структуры при 5% и 20% кислорода приведены на рисунке 1.5.

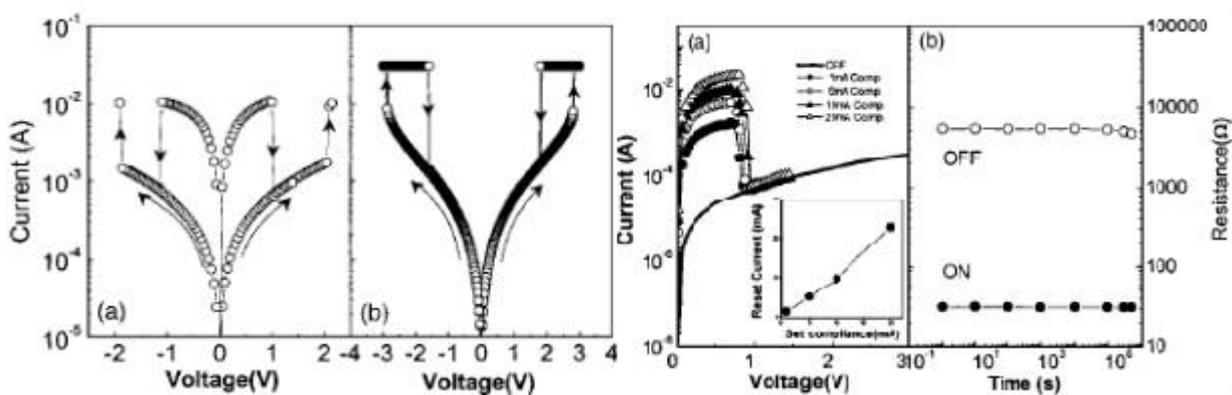


Рисунок 1.4 - Вольтамперные характеристики структуры при 5% и 20% кислорода

При 5% кислорода, когда существуют никелевые внедрения, проявляется переключение с памятью. Ток в состоянии «ON» почти не зависит от толщины пленки, но зависит от устанавливаемого токового уровня при переходе из «OFF» в «ON» примерно пропорционален ему ($R \sim 50$ Ом, при $I = 20$ мА убывает). Ток в состоянии «OFF» зависит от толщины пленки $R \approx (1 \div 10)$ кОм.

Увеличение кислорода приводит к большей стабильности и расширению диапазона состояния «OFF» и к уменьшению диапазона и нестабильности состояния «ON». При 20% кислорода эффект памяти исчезает из-за стабильности при $U = 0$ только состояния «OFF».

Ток в «ON» состоянии обеспечивается никелевыми внедрениями с энергетическим уровнем близком к уровню Ферми, поэтому он существенно превышает (за счет перехода электронов в зону проводимости) ток поляронов никелевых вакансий. При увеличении напряжения (и тока) в «ON» состоянии электроны снова садятся на внедренный Ni и не дают вклад в проводимость (переход в состояние «OFF» при наличии памяти).

К сожалению, в статье [41] не приведены данные о толщине пленки и подробно не рассмотрен переход «ON» в «OFF» при увеличении тока, т.к. не ясен механизм возвращения электронов в Ni дефекты. Так же не понятна зависимость тока «ON» от тока ограничения при переходе «OFF-ON». Можно

предположить, что с ростом тока перехода растет диаметр канала (в статье о диаметре канала и его образовании ничего не говорится).

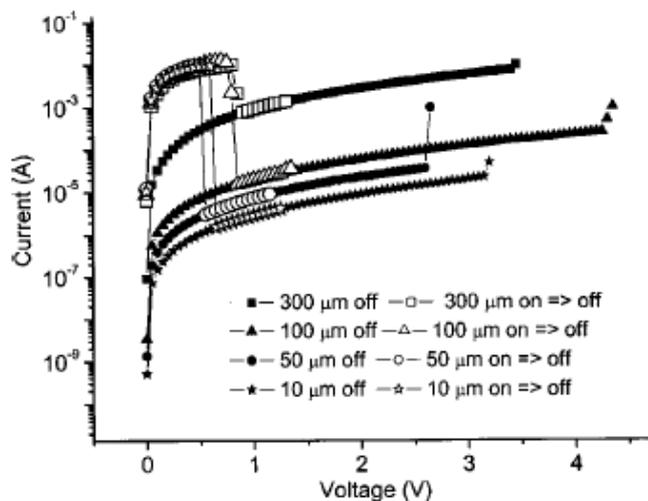


Рисунок 1.5 – Вольтамперные характеристики структуры Pt/NiO-4%/Pt с электродами диаметром в 300, 100, 50 и 10 мкм

В следующей работе этих же авторов [54] исследовалось влияние диаметра верхнего электрода от значения 300 мкм как в [41] до 10 мкм в диаметре. Вольтамперные характеристики приведены на рисунок 1.6. Уменьшение диаметра верхнего электрода практически пропорционально площади электрода уменьшает ток «OFF», слабо (очень) уменьшает ток «ON».

По нашему мнению, вследствие уменьшения межэлектродной емкости и ее разряде – при первом переходе «OFF-ON», что может влиять на диаметр микроканала «ON», а, следовательно, и его сопротивления. Но во всех случаях диаметр канала «ON» меньше диаметра наименьшего электрода, а диаметр канала «OFF» соответствует диаметру электродов.

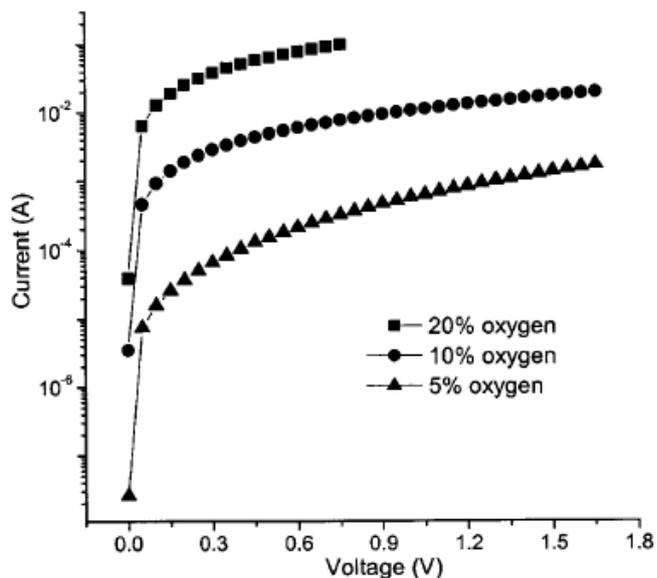


Рисунок 1.6 – Вольтамперные характеристики NiO - 20%(квадраты), NiO - 10%(круги), NiO-5%(треугольники) пленок толщиной 150 нм

Дополнительно в работе [54] исследовалось влияние кислорода при напылении NiO пленки. На рисунке 1.7 показано уменьшение сопротивления «OFF» с ростом кислорода в пленке (рост дырочной проводимости) [55]. Переход в «ON» был устойчивым только при 5% кислорода.

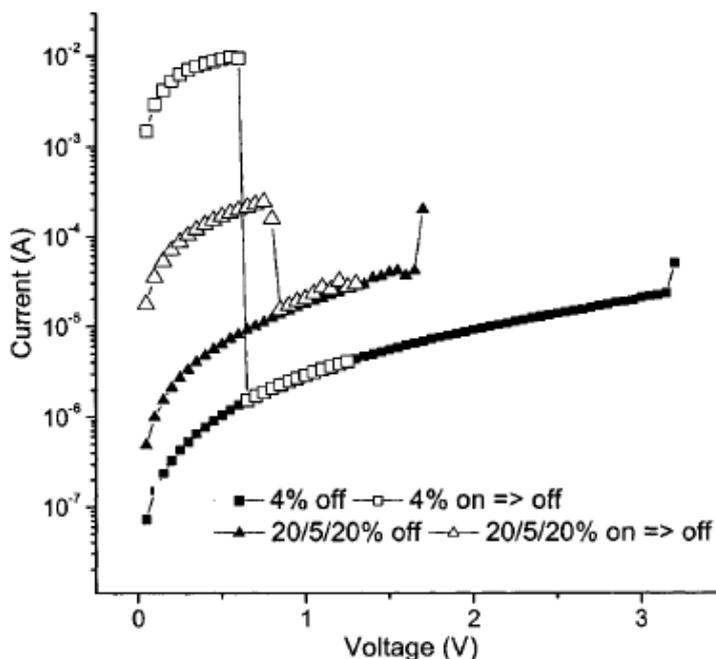


Рисунок 1.7 – Поведение проводимости переключения между NiO-4 однослойный (квадраты) и NiO-20%/NiO-5%/NiO-20% многослойный (треугольники) толщиной 150нм

На рисунке 1.8 исследовалась составная пленка, где средний слой 5% кислорода осуществлял переход «ON-OFF», а крайние 20% слои оставались в состоянии «OFF». Несмотря на малое отношение токов «ON»/«OFF», сам ток «ON» в составной пленке меньше на 2 порядка, что важно для элементов памяти. В последних экспериментах указана толщина пленки 150 нм, которая можно предполагать была и в предыдущих экспериментах.

Микромасштабирование ячеек памяти до $0,05 \text{ мкм}^2$ площади контактов проведена этой же группой авторов в работе [56]. На рисунке 1.9 показана вольтамперная характеристика структур с толщиной NiO 20 нм (площадь контактов $0,05 \text{ мкм}^2$) после формовки «ON-OFF» и обратно при предельном токе 1 мА.

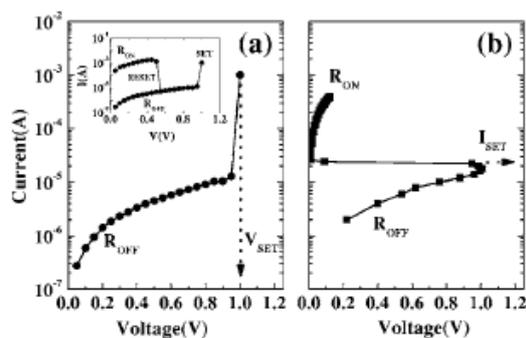


Рисунок 1.8 – Вольтамперная характеристика переключения с памятью при предельном токе 1 мА

Кроме того, плавным установлением тока получена переходная характеристика между «OFF» «ON» состояниями (рис.1.9). Отметим, что наблюдалась нестабильность и от эксперимента к эксперименту (не показана на рис.1.9) и получались разные промежуточные характеристики. Эта нестабильность объясняется малой напряженностью поля при $U= 1\text{В}$ ($E \sim 0,5 \frac{\text{мВ}}{\text{см}}$), в то время как для надежного пробоя пленки NiO необходимо несколько мВ/см. Стабильные характеристики перехода «OFF-ON» получались при установлении тока перехода не менее следующих критических значений: 0,5 мА, 1 мА, 4мА для площадей ячеек $0,05 \text{ мкм}^2$, $0,56 \text{ мкм}^2$, $9,4 \text{ мкм}^2$.

Разброс характеристик при ограничении тока указывает на образование тонких токовых путей, а не общего тока по всему объему ячейки. При очень малом токе наблюдалось разрушение этих проводящих путей и возвращение в состояние «OFF» [52,57]. Шум также наблюдается на переходе «ON-OFF», если напряжение держать точно V_{reset} , для стабильности необходимо его превысить $V > V_{\text{reset}}$.

В [58] показано, что разрушение фрагмента с током возможно нагревом током области внутри фрагмента с высоким сопротивлением. Отмечается, что при очень больших токах перехода «OFF-ON» (более 10 мА при 0,05 мкм²) происходит необратимый пробой.

В работе [59] исследовалось влияние условий нанесения MOM пленок с NiO (температура, окислительная или восстановительная среда) на вольтамперные характеристики. Pt/NiO/Pt получались магнетронным распылением таблеток NiO на термически окисленную Si подложку. Толщина нижнего электрода (Pt) с адгезийным слоем Ti под нижним электродом и оксидного слоя составляла соответственно 100, 20 и 50 нм. Давление Ar 0,5 Па, 200 Вт, комнатная температура. Парциальное давление кислорода 0% и 5% для NiO. Площадь верхнего электрода варьировалась от 20x20 мкм² до 200x200 мкм². Термический отжиг в Ar применялся при $T=673 \div 973$ К.

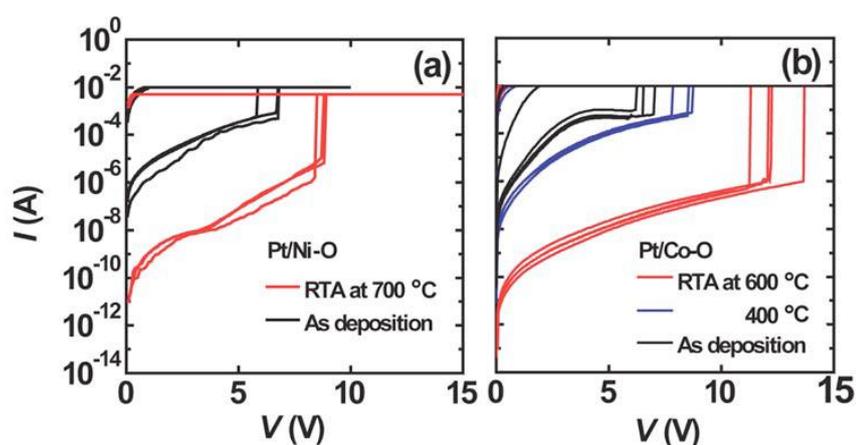


Рисунок 1.9 – Вольтамперные характеристики при разных температурах отжига а)Pt/Ni-O и б)Pt/Co-O

Электронная микроскопия показала, что пленка имеет поликристаллическую структуру с размером зерен ~ 5 нм.

Отжиг увеличивает сопротивление Pt/NiO слоев (рис.1.10). С другой стороны последующее окисление уменьшает сопротивление. При продолжительном окислении (60 сек) переключающие свойства пропадают.

Увеличение площади верхнего электрода уменьшало сопротивление состояния «OFF» и не влияло на сопротивление «ON». Увеличение температуры также уменьшало сопротивление «OFF» и не влияло на сопротивление. Это указывает на влияние джоулевого нагрева на сопротивление окислов. Отжиг не влияет на химическую связь в NiO (рентгеновские спектры не меняются).

В работе [60] экспериментально измерялось время перехода из «ON» в «OFF» под действием одиночного импульса при различных сопротивлениях переходного состояния «ON», измеренного при напряжении 0,1 В для слоя NiO (также для TiO₂). Структура Pt/NiO/Pt (ячейки 1÷1 мкм²) получалось напылением 20 нм NiO пленки (в/ч распыление и окисление кислорода при 360°С). Показано, что время перехода, определяемого по фронту импульса напряжения 0,9 В (для NiO), уменьшается с увеличением сопротивления исходного состояния «ON».

В [60] также предложена модель нагрева фрагмента (тонкого канала с током) аналогичная [42]. Для этого принята радиальная теплопроводность NiO,

окружающего канал, в виде $K_R = \frac{2\pi k' l/4}{\ln r_2/r_1}$, где $k'=0,7$ Вт/см·°С – удельная

теплоемкость NiO, r_1 – радиус канала, r_2 – радиус спада температуры в 2,72

раза, а теплопроводность канала как $K = \frac{k\pi r_1^2}{l/r}$ с удельной теплоемкостью

$k=0,84$ Вт/см·°С. Динамика роста внешнего радиуса r_2 определялась по

зависимости, $r_2 = r_1 + \sqrt{\frac{4k'}{c'\gamma'}t}$, где t – время нагрева $c'=0,5$ Дж/г·°С; $\gamma'=7,75$ г/см³.

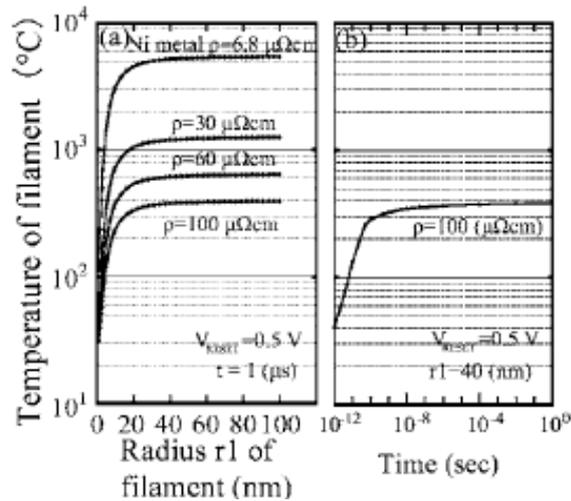


Рисунок 1.10 – Зависимость температуры от а) радиуса нити с 4-мя значениями сопротивления и от б) времени тока нагрева для радиуса 40 нм

На рисунке 1.11 приведена зависимость температуры от радиуса канала, при разных удельных проводимостях ($\rho = 6,8; 30; 60; 100 \text{ мкОм}\cdot\text{см}$), соответствующих интервалу от металла до полупроводника. При $r_1 \geq 10 \text{ нм}$ температура T_{reset} от r_1 не зависит и при $t > 10^{-9} \text{ с}$ слабо зависит от времени. Авторы предполагают анодное окисление как главный механизм «Reset» - возвращение к состоянию «OFF».

Имеются два стабильных энергетических уровня LRS («ON») и HRS («OFF») – низкое и высокое сопротивление состояний. «Reset» означает переход от LRS к HRS при получении пикаактивационной энергии. Общая энергия «Reset»: $N \times w = (v \times T_{\text{reset}}) \times t_{\text{reset}}$, где N – число фрагментов радиусом r_1 и расстояние между ними $> 2r_2$, $w(\text{J})$ – реакционная энергия одного фрагмента, $v(\frac{\text{Дж}}{\text{°C}\cdot\text{сек}})$ – коэффициент реакции «reset», T_{reset} – температура «reset», t_{reset} – общее время «reset». « w » и « v » – определяются материалом, $T_{\text{reset}} \approx \text{const}$ (при $r_1 > 10 \text{ нм}$ и $t > 1 \text{ нс}$). Следовательно, N пропорционально t_{reset} . Общее сопротивление обратно пропорционально числу фрагментов, а $t_{\text{reset}} \sim 1/R$, что согласуется с рисунком 1.12.

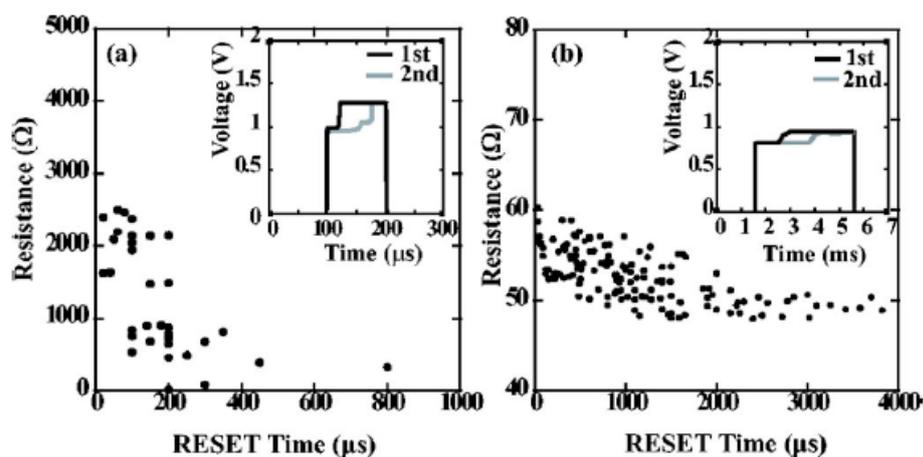


Рисунок 1.11 – Отношения между сопротивлением в LRS и времени Reset для а)TiO₂ и б)NiO

Авторы предполагают, что изменение температуры в течении «Reset» и определяет процессы генерации и диссипации, и приводит к химической реакции, например, «анодное окисление». В результате ток резко падает, и температура фрагмента снова уменьшается в конце «Reset» процесса.

В работе [61] измерялись ВАХ тонкого 40 нм слоя TiO₂ (верхний электрод Pt (100нм), нижний TiN/w (100 нм)) с площадью контакта $\sim 0,07 \text{ мкм}^2$ (диаметр $0,2 \div 0,3 \text{ мкм}$). Сверху Pt наносились Al, под TiN/w-W. На рисунке 1.13 показаны вольтамперные характеристики состояния «ON» с переключением на состояние «OFF». После перехода из состояния «OFF» в «ON» под действием импульса напряжением 6В и длительностями от 10 до 150 нс, а также сопротивление соответствует состоянию «ON» при напряжении 0,2 В и напряжении перехода в состояние «OFF» V_{off} .

Уже при длительности импульса более $50 \div 60 \text{ нс}$ состояние «ON» не меняется (достигает насыщения). Это подтверждает предположения работ [62,63] о тепловом характере переключения «OFF-ON» для получения необходимой мощности для создания проводящего канала, причем при малых длительностях импульса $\sim (10 \div 20 \text{ нс})$ канал ненадежный и снова переходит в «OFF» уже при напряжениях $0,5 \div 0,6 \text{ В}$. В то время при надежном канале ($t_p > 70 \text{ нс}$) необходимо напряжение $\sim 1,2 \text{ В}$. Переход из «ON» в «OFF» также имеет тепловой характер, но требует большей длительности $5 \div 50 \text{ мкс}$.

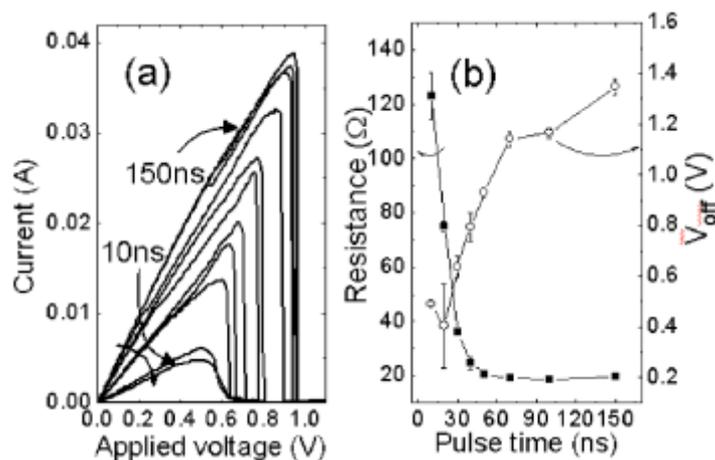


Рисунок 1.12 – а) вольтамперные характеристики ячейки и б) зависимости сопротивления и напряжения от времени переключения

Необходимые для переключения длительности импульсов обоих переходов увеличиваются с уменьшением напряжения. Так надежный переход в «OFF» требует 100 мкс при напряжении 2,3 В и 50 мкс при напряжении 2,7 В, т.е. необходима достаточная мощность для разрушения фрагмента (канала). Заметим, что при $U > 2,7V$ имеется большой разброс времени разрушения хорошо сформированного канала (как бы конкурирует обратный процесс «OFF-ON») (рисунок 1.14b).

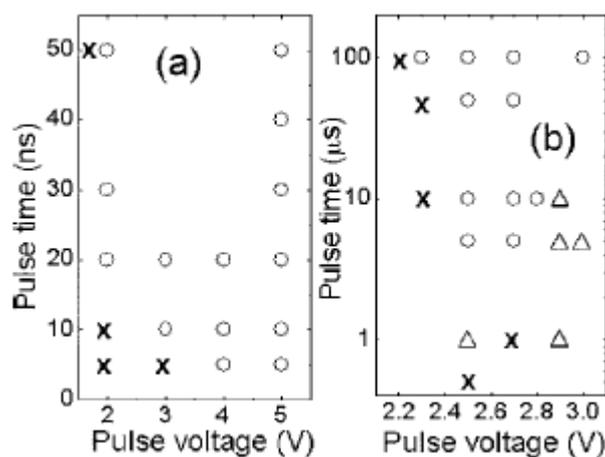


Рисунок 1.13 – Экспериментально определенные значения V_p и t_p для стабильного а) ON переключения и б) OFF переключения

Предполагается, что дислокации в пленке расположены в среднем ~ 10 нм друг от друга в TiO_2 и требуется фрагмент при переходе в «ON» длиной ~ 10 нм

(диффузионный уход кислорода $\sim 10^{-4}$ см²/В·с при $T \sim 700$ К – локальная температура под действием локализации тока).

В [64] исследовались переключающие свойства поликристаллических пленок NiO при низких температурах $10 \text{ K} < T < 300 \text{ K}$. Пленка наносилась магнетронным распылением NiO при 17% кислорода. Толщина пленки $h=300$ нм, диаметр электрода $\Theta=300$ мкм. Переход «OFF-ON» происходит при 1,5 В, «ON-OFF» при 0,8 В при всех температурах. Ток «ON» (~ 10 мА) не зависел от температуры, а ток «OFF» снижался от 0,5 мА до 0,05 мА при снижении температуры до 180 К по закону $I_{OFF}(T) \sim \exp(-\frac{\varphi_i}{K_B T})$, где энергия активации $\varphi_i \approx 0,15$ эВ, и далее оставался неизменным. Авторы полагают, что к току вакансий (поляронов) добавляется ток слабых металлических фрагментарных каналов, сопротивление которых близко к сопротивлению чистого никеля для нанопроволок [65].

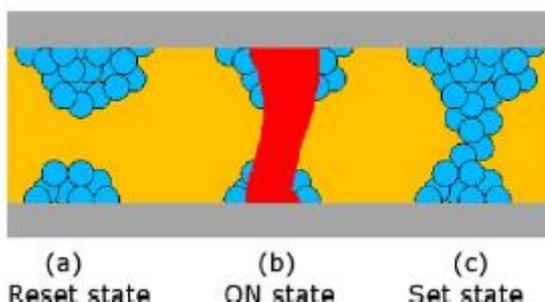


Рисунок 1.14 – а) Схема операции переключения как двухэтапного процесса с состоянием выключения состоящем из разрыва проводящей нити, б) Электронная нить формируется за счет порога переключения приложенного напряжения, в) Проводящая нить сформировалась в результате выброса температуры и тока на стадии порога переключения

В [66] исследовалась статистика токов перехода из «ON» в «OFF», которая показала Пуассоновский закон плотности вероятности. Использовалась пленка NiO $h=50$ нм с Pt электродом 30×30 мкм². $I_{ON-OFF}=1 \div 8$ мА со средним значением 3 мА. Сканирующим зондовым микроскопом (~ 5 нм) исследовалась площадка 2×2 мкм² в состоянии «ON». На этой площадке обнаружено более 10 хаотически расположенных проводящих наноканалов ~ 10 нм.

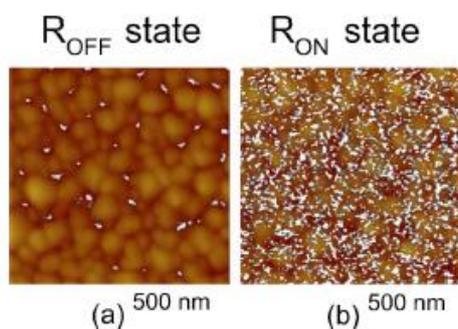


Рисунок 1.15 – Рисунок САFM тонкой пленки NiO при R_{OFF} и R_{ON} соответствующим 100 переключаяющим циклам

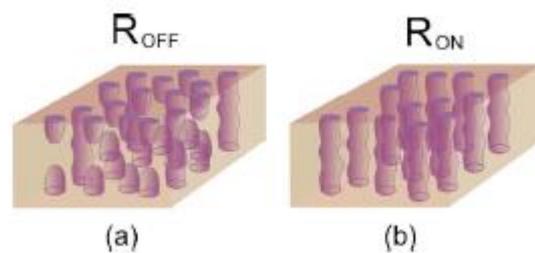


Рисунок 1.16– Схематичный вид модели нитей при механизме резистивного переключения

В [67] при NiO пленке $h=50$ нм использовался ртутный подвижный электрод $\Theta=35$ мкм. Наблюдались надежные характеристики переключения тока – «ON» к току $5 \cdot 10^{-8} \div 4 \cdot 10^{-5}$ - «OFF» на 1,2 В и обратный переход при 2,1В. В «OFF» состоянии на площади $500 \times 500 \text{ нм}^2$ наблюдалось около десятка светящихся пятен (токовые пятна) размером ~ 10 нм на границах зерен. В «ON» состоянии их было более сотни как на границах, так и внутри зерен (рис.1.16).

В работах [68,69] использовалась пленка NiO, $h=160$ нм, верхний электрод Au $40 \times 40 \text{ мкм}^2$, зерна кристаллов $20 \div 30$ нм. Процесс формовки заключался в электрическом пробое NiO напряжением $U=12 \div 16$ В с разрядом паразитной емкости $C=15$ пФ и ток источника, ограниченный $5 \div 15$ мА. Предполагалось структурное изменение NiO при высоких температурах с образованием проводящего канала диаметров ~ 80 нм – «Set» состояние. Переход в высокоомное состояние осуществляется увеличением тока до значения $I_{\text{reset}}=3 \div 4 \text{ мА}$, $U_{\text{reset}}=0,8 \div 1$ В.

Причиной перехода в «Reset» предполагается повышение температуры и уход из канала никелевых внедрений. Переход из «Reset» в «Set» обеспечивается увеличением напряжения до $U_{\text{set}}=1,5 \div 3$ В. Происходит пробой аналогичный «forming», но облегченный уже имеющими проводящими фрагментами у электродов.

Произведен расчет температуры канала совместно с учетом джоулевого нагрева для процесса перехода в «reset». На границах электродов температура принималась 300 К. Диаметр NiO принимался равным диаметру электродов с условием на внешней границе – отсутствие потока тепла. Принимались следующие параметры для проводящего канала: начальный диаметр – 80 нм, удельное сопротивление $\rho_{CF}=810$ мкОм·см, коэффициент теплопроводности $K_{CF}=21,4$ Вт/м·К. Для окружающего канал NiO принималось $\rho_0 = 80 \cdot 10^6$ мкОм·см, $K_0 = 20$ Вт/м·К. Одновременно учитывалось уменьшение диаметра канала за счет ухода никелевых внедрений со скоростью на границе $V_D = 200 \exp\left(\frac{-1,2\epsilon B}{K_B T}\right)$. При выбранном начальном диаметре канала 80 нм и соответствующему по измеренным токам и напряжению $\rho_{CF}=810$ мкОм·см результаты расчета близки к экспериментальным данным, если считать критической температурой ~ 600 К.

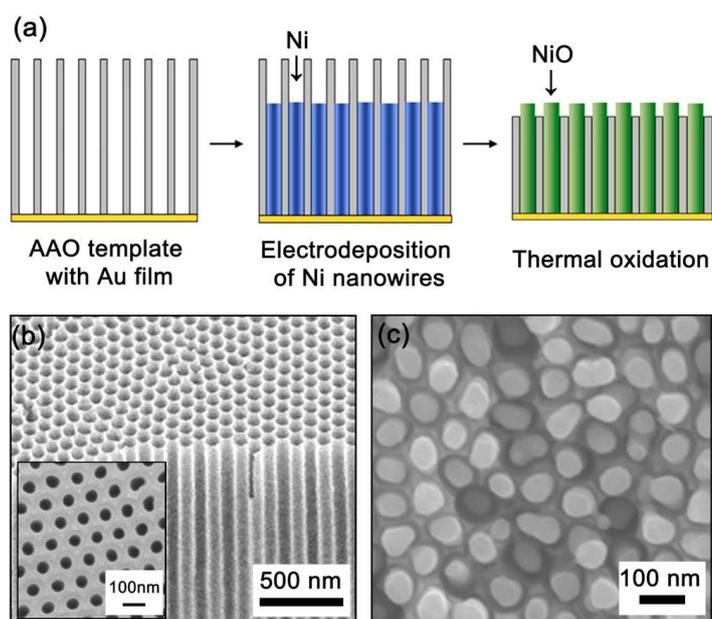


Рисунок 1.17 – а)Схематическое изображение процедуры изготовления массива нанопроволок NiO, б)вид FESEM создания AAO мембран, с)вид FESEM торчащих над AAO мембарной нанопроволок NiO

В [70] исследовался переключающийся элемент в виде нанопроволоки NiO диаметром 70 нм и длиной 1 мкм, 13 мкм, 25 мкм, которые получались заполнением пор в оксиде Al никелем и дальнейшим его окислением. Режим

формовки (пробой) осуществляли при напряжении 2,5 В, 11,5 В и 20,5 В соответственно $l = 1$ мкм, 13 мкм, 25 мкм. Аналогично V_{reset} и V_{set} соответственно были 0,52 В и 1,2 В; 1,95 В и 4,07 В; 5,6 В и 10,25 В, что существенно ниже, чем для пленок той же толщины.

Дальнейшая микроминиатюризация переключающих элементов на NiO пленке исследована в работе [71]. Толщина пленки NiO составляла 50 нм. Электродные ячейки почти вплотную прилегали друг к другу и имели диаметры 300, 150, 70 и 30 нм с плотностью расположения в последнем случае до $1001/\text{мкм}^2$. ВАХ снимались при ограничительном токе 5 нА для электродов радиусом 150 нм. Процесс формовки не требовался. Подвод к электродам осуществлялся платиновым «tip» радиусом $20\div 30$ нм, $V_{\text{set}} \approx 1,8$ В, $V_{\text{reset}} \approx 0,2\div 0,4$ В, $I_{\text{reset}} = 3\div 5$ нА. Вероятность переключений росла с ростом плотности элементов и диаметра электродов, малые переключающие токи вызваны, вероятно, малым током при пробое (5 нА) и образованием малого диаметра филамента. Для одного канала радиусом $\Theta = 70$ нм и длиной $l = 1$ мкм ток $I_{\text{reset}} = 0,23$ мА. Это значение при 0,52 В дает удельное сопротивление при полном заполнении поры проводящим фрагментом $\rho = 870$ мкОм·см, что несколько больше, чем для никелевых нанопроволок [72] $\rho = 250\div 670$ мкОм·см.

Оригинальная конструкция в виде нанодиска однокристалльного NiO с сердцевинкой из Ni исследована в [73]. Диаметр нанодиска варьировался от десятков до 2-3 сотен нм. Общая толщина конструкции менее 100 нм. Толщина пленки – 15 нм. Переключающие свойства были следующие: $V_{\text{forming}} = 4,4$ В, $V_{\text{reset}} \sim 3,6$ В, $I_{\text{reset}} \sim 7$ мкА, $V_{\text{set}} = 4,8$ В. Верхний токовый электрод (tip C-AFM) имел радиус ~ 10 нм. На краях нанодиска наблюдались светящиеся нанофиламенты диаметром 10-30 нм.

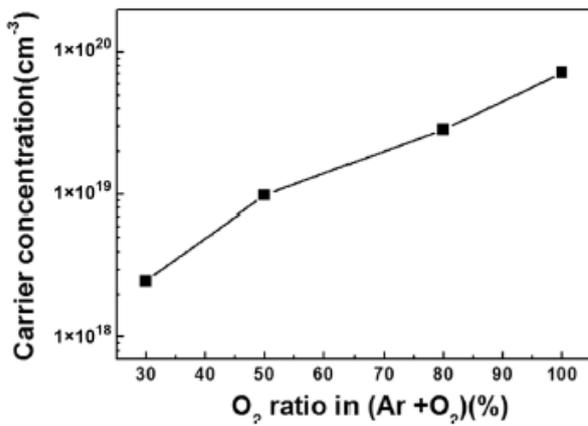


Рисунок 1.18 – Изменение концентрации Ni³⁺ от носителей в пленках оксида никеля с соотношением O₂ во время осаждения

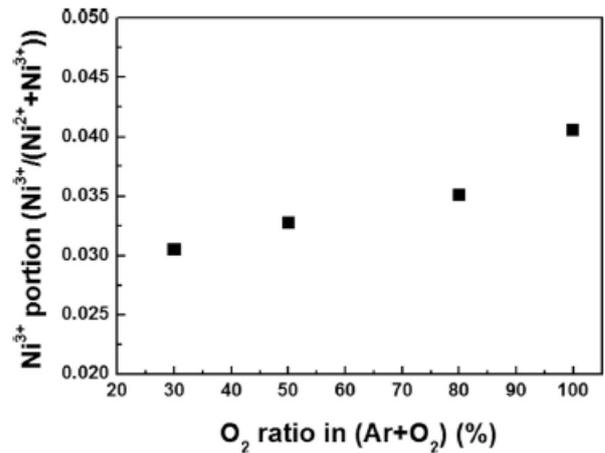


Рисунок 1.19 – Изменение ионов соотношения O₂

В работе [74] исследовалась 100 нм NiO пленка, полученная напылением смеси Ar+O₂ при различных концентрациях кислорода 30÷100% (Рис.1.19, 1.20). Для оценки структуры и состава пленок, а также типа и концентрации свободных носителей применялись методы резерфордского обратного рассеяния, рентгеновской дифрактометрии, Оже электронной спектроскопии. Обнаружено, что концентрация носителей р-типа росла с ростом концентрации O₂ при напылении от 2,2·10¹⁸ см⁻³ при 30% O₂ до 8·10¹⁹ см⁻³ при 100% O₂. Аналогичный рост концентрации Ni³⁺ составил от 0,03 до 0,042 от общего количества никеля. Кислород взаимодействовал с 2-мя Ni²⁺, переводит их в Ni³⁺ и вакансию Ni: $2Ni^{2+} + \frac{1}{2}O_2 \rightarrow 2Ni^{3+} + O^{2-} + V_{Ni}$.

В работе [75] исследовалось влияние ограничения пробойного тока при переходе из «Reset» в «Set» и значений паразитной емкости на состояние канала в состоянии «ON» и ток перехода из «Set» в «Reset». При площади электрода (как и всей пленки NiO). Ограничение тока в пределах (100÷800) мкА почти не влияло на начальное сопротивление Ni⁺ сопротивление $R=0,5V/(3\div4)mA = 120\div150$ Ом и ток $I_{reset} = 2,5$ мА. Уменьшение площади электродов в два раза до 0,5 мм² показало уменьшение $I_{reset}=0,9$ мА при $I_{орп}=0,8$ мА; $I_{reset}=0,5$ мА при $I_{орп}=0,42$ мА; $I_{reset}=0,22$ мА при $I_{орп}=0,18$ мА. Измерение

паразитной емкости на частоте $10^4 \div 10^6$ Гц дало $C=2 \cdot 10^{-14}$ Ф. При увеличении C до $C=7 \cdot 10^{-14}$ Ф при $I_{отр}=0,03$ мА ток I_{ON} рос до 3 мА не переходил в «Reset».

В работе [76] синтезировалась переключательная структура Pt/NiO_x/Pt с толщиной NiO_x ~ 30 нм и верхним электродом площадью 0,25 мкм² толщиной 5-7 нм. Исследовались срезы пленки в первоначальном состоянии, состоянии «Set» и после необратимого пробоя на электронных сканирующих микроскопах (HR-TEM), (HAADF-STEM) и электронной спектроскопией (EELS). Первоначально пленка имела однородную структуру с размером зерен 7÷8 нм. После «Forming» произошли структурные изменения особенно вблизи верхнего электрода. Зерна деформируются, развивая границы, на которых появляются никелевые включения, уменьшающиеся или исчезающие в состоянии «RESET». При необратимом пробое никелевые фрагменты многократно перекрывают толщину пленки. Переходы «Reset» и «Set» авторы объясняют окислением и восстановлением никелевых фрагментов.

В работе [77] измерялись динамические характеристики переключения при быстром линейном нарастании напряжения. Исследовалась NiO пленка толщиной 37 нм с платиновым верхним электродом 40x40 мкм². Проводился «forming» процесс при $U=5 \div 10$ В с ограничительным сопротивлением $R_C \approx 1$ кОм, также как и при переходе «Reset–Set». При обратном переходе $R_C=25$ Ом для детектирования токов перехода.

Электроформовка и переход в «Set» происходит за время ~ 0,1 нс, много меньше разряда паразитной емкости $C=16$ пФ через сопротивление $R_L \sim 1$ кОм ($R_L C \sim 16$ нс). Авторы определили, что при линейном нарастании $U = \beta t$ напряжение перехода в «Set» хорошо аппроксимируется формулой:

$V_{SET} = V_0 \log\left(\frac{\beta \tau_0}{V_0}\right)$, где $V_0 = 29,4$ мВ, $\tau_0 = 4,9 \cdot 10^{16}$ с при 10^{-3} В/с $< \beta < 10^7$ В/с. Это

выражение можно получить из предположения, что плотность вероятности

$$\text{перехода} \frac{dP_{SET}}{dt} = \frac{\exp\left(\frac{V_{SET}}{V_0}\right)}{\tau_0}.$$

Переход в «Reset» объясняется джоулевым разогревом канала с наибольшей температурой в середине между электродами, здесь происходит уменьшение сечения канала за счет одновременно происходящей диффузии и химической реакции. Скорость уменьшения радиуса $V_G = V_{G0} \exp(-\frac{\varepsilon_A}{kT})$, где $\varepsilon_A = 1,4$ эВ до $T = 1455$ К ($T_{пл}$ Ni) $V_{G0} = \frac{\Theta_0}{5 \cdot 10^{-12} c}$, Θ_0 - начальный диаметр канала, а при большей температуре $\varepsilon_A = 0,35$ эВ, $V_{G0} = \frac{\Theta_0}{41 \cdot 10^{-9} c}$.

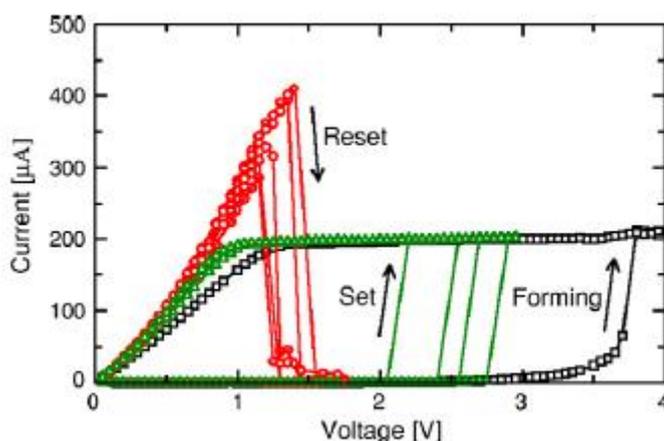


Рисунок 1.20 – Вольтамперные характеристики формовки (Forming), включения (Set), выключения (Reset) 1T1R- устройств

В [78] изменение радиуса верхнего электрода от 0,2 до 1 мкм не изменяло токи I_{set} и I_{reset} , т.к. внутренняя паразитная емкость была существенно меньше внешней даже при ее уменьшении до < 1 пФ установкой последовательного транзистора. Однако ограничение транзистором тока переключения существенно изменяло сопротивление ячейки. $R \approx (1 \div 2) \text{ Ом} / I_{орп}(\text{A})$, что приводит к пропорциональной зависимости $I_{Reset}(\text{A}) \sim I_{орп}$ при переходе в «Set». Это совпадает с данными работы [41].

1.4 Обзор физических параметров составляющих структуру

Теплофизические параметры чистых материалов с размерами образцов более нескольких микрон приведены в работах [79-88]. Данные по NiO

имеются в работах [79,80,81,84]. Влияние высоких температур на параметры металлов – в работах [81,84,86,88]. Влияние примесей в них – в работах [84,87]. Влияние малых размеров образцов (нанопленки и нанопроволоки) исследовано в работах [89-94].

Рассмотрим данные по материалам структуры Ni, NiO, Pt.

1.4.1 Никель

1.4.1.1 Электропроводность Ni

Удельное сопротивление чистого никеля [79] приведено на рисунке 1.22. Электросопротивление никеля возрастает с ростом температуры от $\rho \approx 7,5 \cdot 10^{-8}$ Ом·м при $T = T_0 = 300$ К до $\rho \approx 60 \cdot 10^{-8}$ Ом·м при $T_{пл} = 1728$ К с перегибом характеристики вблизи температуры фазового перехода в Ni $T_{ф.п.} \approx 630$ К. Электросопротивление жидкого никеля при $T \approx 1800$ К $\rho \approx 100 \cdot 10^{-8}$ Ом·м.

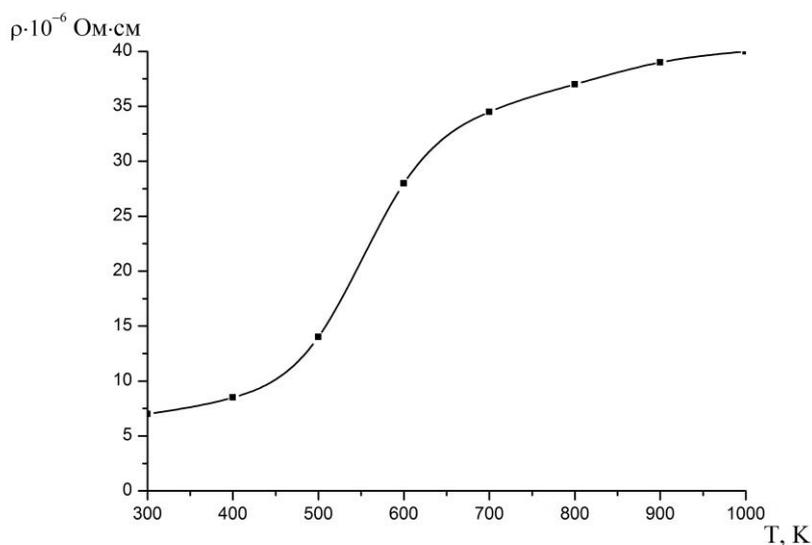


Рисунок 1.21 – Удельное сопротивление чистого никеля

Наличие примесей увеличивает сопротивление твердого никеля и сглаживает зависимость от температуры, приближая ее к прямой пропорциональности. Уменьшение толщины металлической поликристаллической пленки до нанометровых размеров существенно

увеличивает электросопротивление, что связано с диффузным поверхностным рассеянием электронов. На рисунке 1.23 приведены данные работы [89].

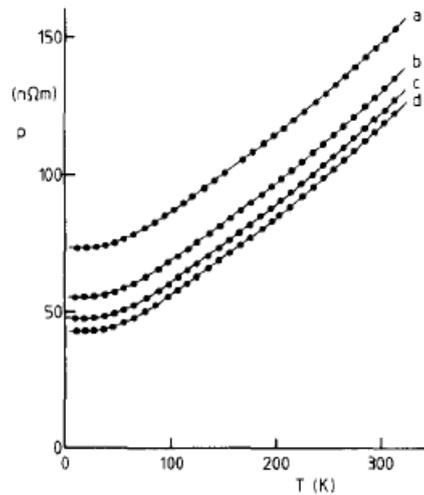


Рисунок 1.22 – Зависимость сопротивления от температуры для 4 осажденных никелевых пленок при различной толщине: а - 18,5 нм; б - 32,2 нм; с - 47,3 нм; d - 65,3 нм

Сопротивление толстых образцов $\rho_{\infty}=10,7 \cdot 10^{-8}$ Ом·м. Пленки получались напылением чистого 99,9 % никеля при комнатной температуре. Последующий 30-минутный отжиг в вакууме при 400°C снижал электросопротивление при $T = 300\text{K}$ примерно в 4,5 раза, при $T = 200\text{K}$ ~ в 2 раза. При $T = 300\text{K}$ сопротивление толстой отожженной пленки близко к сопротивлению монолита $\rho_{\infty}=7,5 \cdot 10^{-8}$ Ом·м. Снижение сопротивления объясняется в [79] укрупнением зерен и уменьшением дефектов в результате отжига. Для не отожженной пленки при $T = 300\text{ K}$ с толщиной d применимо приближение:

$$\rho = \left(0,1 + \frac{1,2}{d(\text{нм})} \right) \cdot 10^{-6} \text{ Ом} \cdot \text{ м}, \quad (1.1)$$

С ростом температуры вблизи 300 К наблюдается минимальный рост сопротивления. Как видно из рисунка 1.23, добавка в сопротивление, вызванная уменьшением толщины пленки, слабо зависит от температуры. Теоретические оценки удельного сопротивления тонких пленок [91-93] подтверждают его рост с уменьшением толщины пленки начиная с $d \approx 100$ нм. Отметим, что это

относится не только к пленкам никеля, но и к целому ряду других металлов: Al, Co, Pt, Ag, Au [90].

Важным моментом постановки задачи моделирования является данные о сопротивлении пленок NiO с каналом проводимости, возникающим после ЭФ. В [75] для пленки NiO толщиной 20 нм также получена металлическая зависимость от температуры:

$$\rho = \rho_0(1 + \alpha(T - T_0)), \text{ где } \alpha = 1,7 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}. \quad (1.2)$$

Авторы [75] оценивают $\rho_0 \approx 1 \cdot 10^{-6}$ Ом·м при предполагаемом диаметре канала (10÷20) нм. В работе [69] для пленки NiO толщиной 160 нм в «ON» состоянии принимались диаметр проводящего канала 80 нм и $\rho = 8,1 \cdot 10^{-6}$ Ом·м.

Усредняя полученные данные удельное сопротивление проводящего канала NiO пленки в «ON» состоянии можно принять при $T > T_0$:

$$\rho \approx \left(0,16 \frac{T}{T_0} + \sqrt{\frac{T}{T_0} \frac{18}{d(\text{нм})}} \right) \cdot 10^{-6} \text{ Ом} \cdot \text{м}, \quad (1.3)$$

где d – диаметр канала, $T_0 = 300 \text{ K}$.

Кроме того, учитывая, что второй член является преобладающим и то, что сопротивление жидкого никеля пропорционально \sqrt{T} , эту же зависимость можно оставить и при $T > T_{\text{плNiO}}$.

1.4.1.2 Теплопроводность Ni

Теплопроводность твердого чистого никеля сначала слабо спадет с ростом температуры до $T = 630 \text{ K}$, затем слабо возрастает, оставаясь в пределах $\lambda = (60 \div 80) \text{ Вт/м} \cdot \text{град}$ [79-84,86,87]. При этом хорошо выполняется закон

Видемана-Франца: $\frac{\lambda \rho}{T} = \text{const} \approx 2,4 \cdot 10^{-8} \text{ Вт/град}^2$.

Примеси сильно уменьшают теплопроводность [84,87]. Так при росте примесей до 2% теплопроводность уменьшается ~ на 20% при этом сглаживается зависимость от температуры. При принятой прямой

пропорциональности от температуры для удельного сопротивления монолита

$\rho \approx 12 \cdot 10^{-8} \frac{T}{T_0} \text{ Ом} \cdot \text{м}$ получим $\lambda = 60 \text{ Вт/м} \cdot \text{град}$ не зависящей от температуры.

Теплопроводность тонких пленок никеля, начиная с $l \sim 300 \text{ нм}$, снижается с уменьшением толщины пленки [94]. Принимая ее снижение таким же, как и для электропроводности, получим:

$$\lambda_{ms} \cong \frac{60}{\left(1 + \frac{100}{r(\text{нм})}\right)} \frac{\text{Вт}}{\text{м} \cdot \text{град}} \quad (1.4)$$

Теплопроводность жидкого чистого никеля $\lambda_{\text{ж}} \approx 69 \text{ Вт/м} \cdot \text{град}$. С учетом наличия примесей для оценочных расчетов можно также принять формулу (1.4) как и твердой фазы, что упрощает расчет.

Теплоемкость твердого никеля несколько растет с ростом температуры от $c = 0,45 \text{ Дж/г} \cdot \text{град}$, $\gamma = 8,9 \text{ г/см}^3$, $c\gamma \approx 4,0 \text{ Дж/см}^3 \cdot \text{град}$ при $T = 300 \text{ К}$ до $c = 0,62 \text{ Дж/г} \cdot \text{град}$, $\gamma = 8,1 \text{ г/см}^3$, $c\gamma \approx 5,0 \text{ Дж/см}^3 \cdot \text{град}$ при $T=1728 \text{ К}$.

Теплоемкость жидкого никеля $c_{\text{ж}} = 0,73 \text{ Дж/г} \cdot \text{град}$, $\gamma_{\text{ж}} = 7,8 \text{ г/см}^3$, $c_{\text{ж}}\gamma_{\text{ж}} \approx 5,69 \text{ Дж/см}^3 \cdot \text{град}$. Примеси несколько сглаживают теплоемкость при фазовом переходе и для оценочных расчетов при высоких температурах можно принять как для твердого, так и жидкого никеля $c\gamma = 5,2 \text{ Дж/см}^3 \cdot \text{град}$.

Теплота плавления никеля $\Delta H_{\text{пл}} \approx 300 \text{ Дж/г} \approx 2,4 \cdot 10^3 \text{ Дж/см}^3$, $T_{\text{пл}} = 1727 \text{ К}$.

1.4.2 Оксид никеля

1.4.2.1 Электропроводность оксида никеля

Электросопротивление NiO имеет полупроводниковый характер [93] и уменьшается с ростом температуры и ростом электрического поля в сильных полях. Частично заполненная d-зона никеля в NiO расщепляется по направлению спина на две подзоны с зазором $\sim 1,3 \text{ эВ}$. Зона выше уровня Ферми (l_g) – пустая, а ниже уровня Ферми (t_{rg}) – полностью заполненная. Переход в верхнюю зону (возбуждение) осуществляется за счет температуры и

сильного электрического поля, что сильно снижает электрическое сопротивление. Дополнительное снижение сопротивления вызывается примесями Ni, либо O₂, количество которых определяется технологией изготовления слоя NiO.

В работе [94] достаточно толстые пленки NiO (3÷30) мкм площадью 2·10⁻⁶ м² получались окислением никелевой пластины кислородом при ≈ 1000 К (5,2 мкм за 32 мин). При достаточно слабых электрических полях $E \leq 10^6$ В/м при комнатной температуре удельное сопротивление оказалось высокое: $\rho \approx 10^6$ Ом·м, но сильно спадало с ростом температуры $\rho = \rho_0 \exp\left(\frac{\varepsilon}{2kT}\right)$.

В работах [95,96] тонкие пленки NiO (150 нм) напылялись при 300 °С магнетронным распылением NiO в смеси Ar + O₂. Отмечается, что уже при 4% O₂ получались пленки NiO с примерно равным количеством примесей Ni и O. Удельное сопротивление таких пленок при комнатной температуре составляло: $\rho \approx 3 \cdot 10^3$ Ом·м; $1 \cdot 10^3$ Ом·м; $4 \cdot 10^2$ Ом·м при соответственно $E=1 \cdot 10^6$ В/м; $1 \cdot 10^7$ В/м; $2 \cdot 10^7$ В/м. Удельное сопротивление от диаметра электродов (5÷300) мкм критически не зависело.

При 10% кислорода в смеси с Ar кислородные примеси в NiO преобладают, и удельное сопротивление уменьшается примерно на порядок, при 20% кислорода – еще почти на порядок и пленка теряет свои переключающие свойства.

Уменьшение удельного сопротивления по сравнению с работой [94] можно объяснить отличием способа образования пленки, уменьшением толщины пленки (~ 100 раз) и вследствие этого увеличением металлических примесей от электродов, а также увеличением электрического поля.

В работе [97] при уменьшении площади электродов до 0,05 мкм² среднее удельное сопротивление падает до 0,4 Ом·м, т.к. проводимость канала в состоянии «OFF» уже превышала проводимость окружающей пленки NiO, а малая толщина пленки (20 нм) увеличивала и количество в ней металлических примесей, и электрическое поле.

В работе [98] 60 нм пленка NiO и затем окислением его при 450°C в воздухе в течение 1 часа. Площадь электродов (46×46 мкм²). Удельное сопротивление пленки оказалось равным $\rho = 180 \text{ Ом}\cdot\text{м}$ при $E = 8 \cdot 10^6 \text{ В/м}$, $\rho = 21 \text{ Ом}\cdot\text{м}$ при $E = 4 \cdot 10^7 \text{ В/м}$. Авторы указывают на незначительность проникновения материала электродов (Pt) в пленку.

Влияние условий получения пленок NiO на их электросопротивление исследовано в работах [99-101].

В работе [99] NiO пленки получались RF-магнетронным распылением NiO (99,999%) мишени. Мощность RF разряда постоянна – 50 Вт. Рабочий газ-смесь Ar+O₂ при изменении кислорода в смеси 0÷100%, давление смеси изменялось в пределах 0,53÷2,66 Па. Стеклоподложка либо не подогревалась (нагрев от разряда 140°C), либо подогревалась до 200°C и 300°C. Исследовалось также влияние последующего нагрева пленки. Измерения делались при толщине пленки ~ 110 нм. Результаты измерений следующие:

- при чистом Ar (0% O₂) пленка имела металлический характер $\rho \approx 10^{-6} \text{ Ом}\cdot\text{м}$, но круто поднималось при увеличении кислорода до 20%, после чего очень медленно спадала. Одновременно изменяла цвет от темно-коричневого до серого;

- при напылении при 20 ÷ 40% O₂ подогрев подложки до 200°C очень слабо снижал удельное сопротивление, а подогрев до 300°C увеличивал сопротивление в 2÷3 раза (с 3÷4 Ом·см до 8÷10 Ом·см). Последующий нагрев готовой пленки (полученной в чистом O₂ при 200°C) в течение часа показал:

1) при нагреве до 100°C сопротивление падало ~ в 2 раза, при остывании – возвращалось;

2) при нагреве до 200°C сопротивление падало в 4 раза от первоначального, при выдержке и остывании – снова росло и при комнатной температуре возрастало на порядок от первоначального;

3) при нагреве до 500°C после минимума на 200°C сопротивление слегка возрастало до 0,75 от первоначального, затем при остывании возрастало на 3

порядка от первоначального. При последующих нагревах сопротивление изменялось по той же кривой, что и при остывании.

Предположения авторов: первоначальный нагрев свыше $200^{\circ}\text{C} \div 300^{\circ}\text{C}$ устраняет наличие примесей Ni и O_2 и сопротивление возрастает. После отжига оно стабилизируется и уже обратимо сильно падает с ростом температуры.

После отжига при 500°C для полученных при чистом O_2 NiO, справедлива зависимость: $\rho \approx 5 \cdot 10^{-4} \exp\left(\frac{3600}{T(K)}\right) \text{ Ом} \cdot \text{м}$, что дает $\rho \approx 82 \text{ Ом} \cdot \text{м}$ при $T = 300 \text{ К}$ и $\rho \approx 0,05 \text{ Ом} \cdot \text{м}$ при $T = 770 \text{ К}$.

В работе [100] NiO пленки толщиной 50 нм получались магнетронным распылением NiO на окисленную кремниевую подложку при давлении $\text{Ar}+5\% \text{ O}_2$ $p=0,5 \text{ Па}$, 200 Вт при комнатной температуре. Расстояние до подложки не указано. После отжига при 700°C удельное сопротивление при $T = 300\text{К}$ составило $\rho \sim 10^4 \text{ Ом} \cdot \text{м}$, при $T = 470\text{К} - \rho \sim 10^2 \text{ Ом} \cdot \text{м}$.

Увеличение сопротивления по сравнению с работой [99] вероятно вызвано увеличением мощности RF разряда и увеличением температуры отжига пленки.

Влияние мощности магнетронного распыления на удельное сопротивление пленок NiO исследовалось в работе [101]. При температуре подложки 20°C оказалось $\rho = 0,17 \text{ Ом} \cdot \text{м}$ (100 Вт), $\rho = 1,3 \text{ Ом} \cdot \text{м}$ (150 Вт), $\rho = 4,6 \text{ Ом} \cdot \text{м}$ (200 Вт).

С ростом температуры стеклянной подложки до 350°C эти данные сглаживались. Последующего отжига не производилось.

Выдержка в течение 60 дней показала рост сопротивления на 30% - 40% для прогретых мишеней и рост в $2 \div 2,5$ раза для $T = 20^{\circ}\text{C}$. С ростом температуры подложки ром размер зерен NiO от 11 нм до 18 нм.

Подводя итоги, можно отметить сильное влияние на удельное сопротивление NiO пленок условий ее получения (на 3 порядка величины). Последующий отжиг при $T > 500^{\circ}\text{C}$ увеличивает и стабилизирует удельное сопротивление.

Для пленок, толщиной $\sim 100 \text{ нм}$, после отжига можно принять при $E < 10^6 \text{ ВТ/м}$:

$$\rho \approx (10^{-2} \div 10^{-3}) \exp\left(\frac{3600}{T(K)}\right) \text{ Ом} \cdot \text{ м}, \quad (1.5)$$

что дает при комнатной температуре $\rho = (160 \div 1600) \text{ Ом} \cdot \text{ м}$.

С ростом электрического поля сопротивление падает пропорционально

$$\left(1 + \frac{E \left(\frac{\text{В}}{\text{м}}\right)}{5 \cdot 10^6}\right)^{-1}.$$

1.4.2.2 Теплопроводность оксида никеля

По данным [79] плотноспеченный NiO $\gamma = 6,8 \text{ г/см}^3$ имеет $\lambda = 13 \text{ Вт/м} \cdot \text{град}$ ($T = 400 \text{ К}$), $\lambda = 6 \text{ Вт/м} \cdot \text{град}$ ($T = 700 \text{ К}$), $\lambda = 5 \text{ Вт/м} \cdot \text{град}$ ($T = 1700 \text{ К}$).

Для несколько более плотной оксидной пленки $\gamma = 7,7 \text{ г/см}^3$ λ может быть несколько больше.

В работе [102] измерялась теплопроводность монокристалла NiO ($d = 0,5 \text{ нм}$, $l = 2 \text{ см}$). При $T = 300 \text{ К}$ получено $\lambda \approx 38 \text{ Вт/м} \cdot \text{град}$, при $T = 410 \text{ К}$ – $\lambda = 19 \text{ Вт/м} \cdot \text{град}$.

Усредненная теплопроводность монокристалла и спеченного NiO для поликристаллических пленок с примесями можно положить:

$$\lambda = \frac{24 \sqrt{\frac{T}{T_0}} \text{ Вт}}{1 + \frac{100}{l(\text{нм})} \text{ м} \cdot \text{град}} \quad (1.6)$$

С уменьшением толщины пленки « l » теплопроводность уменьшается за счет уменьшения размеров кристаллов [92].

1.4.2.3 Теплоемкость NiO

Очень слабо возрастает при высоких температурах $C \approx 0,7$ Дж/г·град ($T = 600$ К); $C \approx 0,8$ Дж/г·град ($T = 1500$ К). При уменьшении с ростом температуры плотности NiO, можно положить произведение: $C\gamma \approx 5,8$ Дж/см³град. Для более точной зависимости от температуры при низких температурах: $C\gamma \approx 4,6 + 0,3(T/T_0 - 1)$ Дж/см³град.

Теплота плавления NiO $\Delta H_{\text{пл}} = 5 \cdot 10^9$ Дж/м³ ≈ 5000 Дж/см³; $T_{\text{пл}} = 2230$ К (1957°С).

1.4.3 Платина

$\gamma = 21,47$ г/см³; $T_{\text{пл}} = 2045$ К (1772°С); $\Delta H_{\text{пл}} = 102,4$ Дж/г ≈ 2000 Дж/см³.

Удельное сопротивление: $\rho \approx 1 \cdot 10^{-7} \cdot \frac{T}{T_0}$ Ом·м; $\rho_{\text{ж}} = 93 \cdot 10^{-8}$ Ом·м.

Коэффициент температуропроводности почти не зависит от температуры

$\chi = \frac{\lambda}{\gamma C} = 24 \cdot 10^{-6} \frac{\text{м}^2}{\text{с}} = \text{const}$. Удельное сопротивление при высоких

температурах ($T = 2000$ К) $\rho_{\text{Pt}} = 58 \cdot 10^{-8}$ Ом·м.

1.5 Перенос атомов, ионов, и их вакансий в NiO

Диффузия Ni в NiO определяется выражением:

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{\varepsilon}{RT}\right), \quad (1.7)$$

где ε (кДж/К·моль) – энергия активации, R – универсальная газовая постоянная. Значения D_0 и ε у разных авторов различны.

Еще в 1957 году в [103] измерялся коэффициент диффузии атомов Ni в поликристаллическом и монокристаллическом NiO при высоких температурах (1000÷1400°С). Получено выражение $D = D_0 \exp\left(-\frac{22260}{T(K)}\right)$, где $D_0 = 5 \cdot 10^{-4}$ см²/с

– поликристалл, $D_0 = 3,9 \cdot 10^{-4} \text{ см}^2/\text{с}$ – монокристалл. Использовался диск 7/16 дюйма диаметром. Если аппроксимировать поликристалл до $T_{\text{шлNi}} = 1728 \text{ К}$, $D = 1,27 \cdot 10^{-9} \text{ см}^2/\text{с}$ при $l = 10^{-7} \text{ м}$, до $T_{\text{шлNiO}} = 2230 \text{ К}$, $D = 2,3 \cdot 10^{-8} \text{ см}^2/\text{с}$. Последнее значение дает среднее время проникновения $t \approx \frac{l^2}{D} = \frac{10^{-10} \text{ см}^2}{2,3 \cdot 10^{-8}} \approx 4 \cdot 10^{-3} \text{ с}$.

В [95] для однокристалльного NiO площадью $4 \times 5 \text{ мм}^2$ толщиной 2 мм при $T = 1000 \div 1470 \text{ }^\circ\text{C}$ получено $\varepsilon = 45,6 \text{ ккал}$, $D_0 = 1,83 \cdot 10^{-3} \text{ см}^2/\text{с}$; $\frac{\varepsilon}{RT} = \frac{22960}{T(K)}$. В

[99] также для однокристалльного NiO ($1 \text{ см}^2 \times 3 \text{ мм}$) при $T = 700 \div 1400 \text{ }^\circ\text{C}$ получено:

$$D = (1,5 \pm 0,8) \cdot 10^{-2} \exp\left\{\frac{-58 \pm 1 \text{ ккал}}{RT}\right\} \frac{\text{см}^2}{\text{с}} \quad (1.8)$$

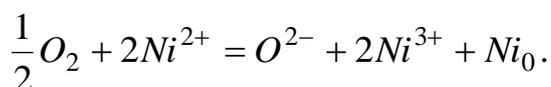
$$\frac{\varepsilon}{RT} = \frac{29200}{T(K)}. \text{ В частности:}$$

Таблица 1.1 – Значения коэффициента диффузии при различной температуре

T, °C	1400	1300	1200	1100	1000	900	825	700
$D \cdot 10^{-12}, \text{ см}^2/\text{с}$	365	163	34	7,3	1,34	0,269	0,0445	0,000125

Одновременно при $T=600 \text{ }^\circ\text{C}$ измерялась диффузия Ni по межкристаллическим границам зерен, для чего использовался бикристалл. Было получено $D_{\text{GB}} \cdot \delta = 3 \cdot 10^{-19} \text{ см}^3/\text{с}$, δ - размер зерна. При $\delta = 10 \text{ нм}$ получим $D_{\text{GB}} \approx 3 \cdot 10^{-13} \text{ см}^2/\text{с}$, что существенно выше диффузии Ni в монолите NiO.

В [100,101] исследовано поведение никелевых вакансий в NiO. Отсутствие иона Ni^{++} в решетке NiO для сохранения заряда приводит к увеличению заряда двух соседних ионов до Ni^{3+} . Следовательно, концентрация Ni^{3+} равна удвоенной концентрации никелевых вакансий Ni_0 . Образование никелевых вакансий происходит при избытке кислорода.



Константа перехода $K = const \frac{(Ni^{3+})^2 Ni_0 N_{O_2}}{N_{O_2}^{1/2} (Ni^{2+})^2}$. Учитывая, что

$N_{O_2} = N_i^{2+} = 5,6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3} = const$, для относительных значений концентраций получим:

$$K = const \frac{[Ni^{3+}]^2 [Ni_0]}{P_0^{1/2}} = \frac{[Ni^{3+}]^3}{2P_0^{1/2}} \cdot const, \quad (1.9)$$

P_{O_2} – парциальное давление избыточного кислорода в NiO.

Зависимость K от температуры определяется энергией активации:

$$K \sim \exp\left(-\frac{\Delta H_f}{RT}\right), \text{ тогда } [Ni^{3+}] = C \cdot P_0^{1/6} \exp\left(-\frac{\Delta H_f}{3RT}\right).$$

Автор [100] дает следующие значения:

$$[Ni^{3+}] = 0,22 P_0^{1/6} \exp\left(-\frac{17800 \text{ кал}}{RT}\right) = 0,22 P_0^{1/6} \exp\left(-\frac{8960}{T}\right). Ni^{3+} \text{ легко принимает}$$

электрон с образованием дырки «P» в валентной зоне $Ni^{3+} \leftrightarrow Ni^{2+} + P$, создавая дырочную проводимость. Для коэффициента диффузии никелевых

$$\text{вакансий в [100] принималось: } D_{Ni_0} = 40 \exp\left(-\frac{50600 \text{ кал}}{RT}\right).$$

В работе [102] методом молекулярной динамики исследовалась диффузия никелевых вакансий по граням кристаллов (GB) NiO межатомное взаимодействие описывалось неизменным ионным потенциалом. Диффузия вакансий осуществляется прыжком в соседний узел решетки. Диффузия вакансий Ni_0 и атомов Ni определялась по среднеквадратичному смещению, а также по частоте прыжков.

Для объемной диффузии совершенного кристалла принималось: $T=2350 \text{ К}$ $D_{vol}^{vac} = 1,05 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$; $T=2500 \text{ К}$ $D_{vol}^{vac} = 2,25 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$; $T=2650 \text{ К}$ $D_{vol}^{vac} = 2,7 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$. Для диффузии по граням: $T=2250 \text{ К}$ $D_{GB}^{vac} = 1,5 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$; $T = 2350 \text{ К}$

$$D_{vol}^{vac} = 2,2 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}; T=2500 \text{ К } D_{vol}^{vac} = 3,2 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}; T=2650 \text{ К } D_{GB}^{vac} = 4,1 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}. D = D_0 \exp\left(-\frac{\varepsilon}{K_B T}\right), \varepsilon=1,5 \text{ эВ(vac)}, \varepsilon=1,26 \text{ эВ(GB)}, \frac{D_{GB}^{vac}}{D_{vol}^{vac}} = 0,51 \exp\left(\frac{0,28 \text{ эВ}}{K_B T}\right).$$

Для диффузии атомов Ni по граням кристалла.

$$T=2250\text{К}, \quad D_{\perp}^{Ni} = \frac{0,33}{0,4} \cdot 10^{-7} \frac{\text{см}^2}{\text{с}} \quad D_{\parallel}^{Ni} = \frac{0,54}{0,8} \cdot 10^{-7} \frac{\text{см}^2}{\text{с}}; \quad T=2350\text{К},$$

$$D_{\perp}^{Ni} = \frac{0,46}{0,7} \cdot 10^{-7} \frac{\text{см}^2}{\text{с}} \quad D_{\parallel}^{Ni} = \frac{0,6}{1,0} \cdot 10^{-7} \frac{\text{см}^2}{\text{с}}; \quad T=2500\text{К}, \quad D_{\perp}^{Ni} = \frac{0,83}{1,29} \cdot 10^{-7} \frac{\text{см}^2}{\text{с}}$$

$$D_{\parallel}^{Ni} = \frac{0,9}{1,3} \cdot 10^{-7} \frac{\text{см}^2}{\text{с}}; \quad T=2650\text{К}, \quad D_{\perp}^{Ni} = \frac{0,98}{1,56} \cdot 10^{-7} \frac{\text{см}^2}{\text{с}} \quad D_{\parallel}^{Ni} = \frac{1,2}{1,9} \cdot 10^{-7} \frac{\text{см}^2}{\text{с}} \quad (\text{числитель по}$$

среднеквадратичному смещению, знаменатель – по частоте прыжков).

$$\frac{D_{GB}^{Ni}}{D_{vac}^{Ni}} = 1,57 \exp\left(\frac{0,53 \text{ эВ}}{KT}\right). \quad \text{Эти значения близки к данным работы [95]}$$

$$D^{Ni} = 5 \cdot 10^{-4} \exp\left(-\frac{22245}{T(K)}\right) \text{ и [105] } D^{Ni} = 1,83 \cdot 10^{-3} \exp\left(-\frac{22960}{T(K)}\right).$$

В более поздней работе [104] методом молекулярной динамики получено:

$$\text{коэффициент диффузии никеля } D(Ni) = 1,5 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{58000}{RT}\right) \frac{\text{см}^2}{\text{с}}.$$

$$\text{Коэффициент диффузии кислорода в NiO } D(O) = 10^{-5} \exp\left(-\frac{54000}{RT}\right) \frac{\text{см}^2}{\text{с}}.$$

Для сравнения рассмотрим данные в обзорной работе [105]. Для коэффициента диффузии Ni при $T=1000 \div 1500^\circ\text{C}$ дано:

Таблица 1.2 – Данные коэффициента диффузии из различных источников

$D_{Ni}, \text{ см}^2/\text{с}$	Источник
$4,8 \cdot 10^{-4} \exp\left(-\frac{44,8 \text{ ккал/моль}}{RT}\right)$	[106]
$4,4 \cdot 10^{-4} \exp\left(-\frac{44,2 \text{ ккал/моль}}{RT}\right)$	[95]
$1,72 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{56 \text{ ккал/моль}}{RT}\right)$	[107]

$4,77 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{60,8 \text{ ккал/моль}}{RT}\right)$	[108]
--	-------

Автор [105] дает предпочтение данным работы [108]. В [105] приводятся также константы скорости окисления Ni по данным [109]:

$$\frac{dx}{dt} = \frac{K_p}{x}; \quad x^2 = 2K_p t + C. \quad (1.10)$$

$K_p = 1 \cdot 10^{-10}$ см⁴/с при $T = 1000^\circ\text{C}$, $K_p = 2,1 \cdot 10^{-9}$ см⁴/с при $T = 1300^\circ\text{C}$, $K_p = 7,4 \cdot 10^{-9}$ см⁴/с при $T = 1400^\circ\text{C}$. И данные по диффузии кислорода в монокристалле NiO согласно [110] $D_O = 6,2 \cdot 10^{-4} \exp\left(-\frac{57500 \text{ ккал}}{RT}\right) \text{ см}^2/\text{с}$, которая примерно в 20 раз ниже диффузии никеля и по предположению авторов соответствует диффузии по междоузлиям. В [111] дан коэффициент диффузии кислорода в NiO аналогичный [110] $D_O = 6,2 \cdot 10^{-4} \exp\left(-\frac{57500 \text{ ккал}}{RT}\right) \text{ см}^2/\text{с}$.

Подводя итоги по данным коэффициента диффузии можно принять следующее значение – среднее значение D_{Ni} в монокристалле близко к данным работ [99], [104] $D_{Ni} = 1,5 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{58000 \text{ ккал}}{RT}\right) = 1,5 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{29200}{T}\right) \frac{\text{см}^2}{\text{с}}$.

Для диффузии по граням поликристалла [102] $\frac{D_{Ni}^{GB}}{D_{Ni}} = 1,57 \exp\left(\frac{0,53 \text{ эВ}}{KT}\right)$ это

дает: $D_{Ni}^{GB} = 2,4 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{45800 \text{ ккал}}{RT}\right) = 2,4 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{23000}{T}\right) \frac{\text{см}^2}{\text{с}}$. Для

диффузии никелевых вакансий [102]: $D_{Ni}^{вак} = 1,9 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{34540 \text{ ккал}}{RT}\right)$,

$D_{Ni}^{вакGB} \approx 1,0 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{28200 \text{ ккал}}{RT}\right) = 1,0 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{1420}{T}\right) \frac{\text{см}^2}{\text{с}}$. Для диффузии

$$D_0 = 6,2 \cdot 10^{-4} \exp\left(-\frac{57500 \text{ ккал}}{RT}\right) = 6,2 \cdot 10^{-4} \exp\left(-\frac{28950}{T}\right) \frac{\text{см}^2}{\text{с}}.$$

Рассмотрим работы по окислению никеля. В работе [109] окисление никеля происходило по параболическому закону $\frac{dx}{dt} = \frac{K'_p}{x}$; $d^2 = 2K'_p t$, $K'_p = 1 \cdot 10^{-10} \text{ см}^2/\text{с}$ при $T = 1000^\circ\text{C}$, $K'_p = 2,1 \cdot 10^{-9} \text{ см}^2/\text{с}$ при $T = 1300^\circ\text{C}$, $K'_p = 7,4 \cdot 10^{-9} \text{ см}^2/\text{с}$ при $T = 1400^\circ\text{C}$. Тогда $K'_p = 6,4 \cdot 10^{-3} \exp\left(-\frac{1,95 \text{ эВ}}{KT}\right) \frac{\text{см}^2}{\text{с}}$.

В [112] приведены данные параболического окисления никеля по дополнительной маске NiO, полученной на 1 см^2 поверхности $\Delta m \left(\frac{\text{г}}{\text{см}^2}\right) = \sqrt{K''_p}$, $K''_p = 0,032 \exp\left(-\frac{1,95 \text{ эВ}}{KT}\right) \frac{\text{г}^2}{\text{см}^4 \text{с}}$ при $T \sim 700^\circ\text{C}$. Здесь 1,95 эВ равно энергии активации диффузии Ni по граням NiO для перехода от Δm к толщине пленки NiO – « d » имеем:

$$\Delta m/d = \gamma_{\text{NiO}} \left(\frac{A_0}{A_{\text{Ni}} + A_0} \right), \quad (1.11)$$

где $A_0 = 16$, $A_{\text{Ni}} = 58,69$ – атомные веса. При $\gamma_{\text{NiO}} = 7,45$, $\Delta m = 0,214 \gamma_{\text{NiO}} \cdot d = 1,6d \text{ г/см}^2$.

Для перехода к « K'_p », получим $K'_p \approx 0,2K''_p$, что соответствует данным [109]. В [115] при окислении никеля в воздухе при $T = 700^\circ\text{C}$ получено $d = 6,13 \text{ мкм}$ за время окисления 100 часов. Тогда $K'_p = 5,2 \cdot 10^{-3} \exp\left(-\frac{1,95 \text{ эВ}}{KT}\right) \frac{\text{см}^2}{\text{с}}$ при $T \sim 700^\circ\text{C}$. В [114] измерялась толщина пленки NiO при окислении Ni при $T = 380^\circ\text{C} \div 530^\circ\text{C}$ за время $10 \div 90$ мин. Получена параболическая зависимость от времени $d^2_{\text{NiO}} = 2,68 \cdot 10^{-14} \cdot t \text{ (см}^2\text{)}$ при $T = 450^\circ\text{C}$ с зависимостью от температуры с энергией активации 1,74 эВ. Это дает значение $K'_p = 0,0178 \cdot \exp\left(-\frac{1,74 \text{ эВ}}{KT}\right) \frac{\text{см}^2}{\text{с}}$.

Большое полученное значение K'_p может быть вызвано тем, что окислялась

пленка Ni, полученная магнетронным распылением, а, следовательно, со значительным количеством дефектов в отличие от предыдущих работ, где окислялась монолитная никелевая фольга либо пластина Ni. Значение

$K'_p = 6,4 \cdot 10^{-3} \exp\left(-\frac{1,95эВ}{KT}\right) \frac{см^2}{с}$ также подтверждено в [115] при окислении

никелевой фольги. В тоже время, скорость окисления напыленной пленки никеля [114] близка к коэффициенту диффузии никелевых вакансий

$D_{Ni}^{вак} = 1,9 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{17400}{T}\right) \frac{см^2}{с} = 1,9 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{1,5эВ}{KT}\right)$. При этом для

среднеквадратичного смещения в одномерном случае имеем $\overline{x^2} = 2dt$ как и для скорости окисления $d^2 = 2K'_p t$.

1.6 Выводы по обзору

На основании проведенного анализа научных статей, посвященных исследованиям эффекта униполярного резистивного переключения в структурах на основе оксидов металлов, в частности на основе NiO можно сделать следующие выводы:

1. Исследования униполярного резистивного переключения на основе оксидов металлов находятся в центре внимания многих мировых лабораторий, специализирующихся на задачах разработки новой универсальной ReRAM памяти. Среди перспективных материалов ReRAM оксид никеля - явный лидер по числу исследований с прикладной точки зрения и в фундаментальном аспекте, выступающий своего рода как модельный объект. Теоретическая сторона вопроса важна, потому что существующие модельные представления механизма ReRAM в оксиде никеля явно недостаточны для использования их в эффективной реализации этого явления. Параметры работы ReRAM структур даже в пределах одного материала (оксида никеля) значительно различаются и зависят от способа его получения, от материала электродов, режима формовки,

некоторых сопутствующих переключения факторов, в частности паразитной емкости подводов, и т.д. Поэтому задача численного моделирования эффекта ReRAM хотя и не выходит на первый план исследований, тем не менее, имеет огромное практическое значение.

2. Непосредственно по исследуемому объекту можно заключить следующее.

В кристалле NiO могут быть следующие дефекты:

1. Внедренный никель, легко ионизируется и отдает электроны в зону проводимости (полупроводник – n-типа). Дополнительно внедренный никель, соединяясь, образует металлические островки (фрагменты) с возможностью туннелирования электронов между ними, особенно при положительном заряде этих фрагментов;

2. Избыток кислорода может быть как внедренным, создавая ловушки для электронов и препятствовать своим зарядом току, так и в виде вакансий Ni (пустоты в решетке). В соседних узлах для сохранения квазинейтральности два атома Ni имеют заряд Ni^{3+} , который может перепрыгивать из одной вакансии к другой (дырочная проводимость p-тип).

Переход в «ON» осуществляется повышением напряжения с достаточно сильным, но коротким током (50 нс – 1 мкс). Процесс пробоя проходит за время $\sim 0,1$ нс с последующим образованием проводящего канала за счет джоулева нагрева со структурными изменениями и ростом металлических фрагментов [41, 66-69, 75, 77].

Увеличение тока пробоя (и увеличение паразитной емкости) увеличивает диаметр канала и предельный ток состояния «ON». Однако при очень большом токе полученное проводящее состояние теряет управляемость и не переводится в состояние «OFF». С другой стороны при очень малом токе пробоя структура самостоятельной возвращается в состояние «OFF».

Возможные механизмы перехода в «ON»:

1. Внедренные в NiO атомы Ni ионизируются приложенным напряжением, аналогичную роль играют внедренные ионы анода. [25, 45-49]

Положительный заряд металлических островков создает условия для туннелирования электронов. В тоже время, срыв электронов и внедренного кислорода создает ловушки для токовых электронов. В сильном поле пробоя уход электронов превышает их захват и сохраняется проводящее состояние. При большом же токе состояния «ON» и малых напряжениях захват электронов в ловушке превышает их уход, и проводимость исчезает, таким образом, переходы «OFF-ON» и обратный объясняются только электронными эффектами и не сопровождаются ион атомными перемещениями;

2. Проводящий канал образуется за счет роста никелевых фрагментов диффузионным приходом никеля и уходом кислорода. Возможная природа прохождения тока – прыжковая электронная проводимость между металлическими фрагментами. Показана необходимость достаточной мощности разряда высокого напряжения, что указывает на участие тепловых процессов при переходе «OFF-ON» [42, 52, 62-63, 66-70, 77, 116-118].

Возможные механизмы перехода в «OFF» сильным продолжительным током (более $10 \div 50$ мкс):

1. Заряд кислородных ловушек токовыми электронами при снижении их ухода из-за низкого напряжения;

2. Уход Ni из токовых фрагментов, и приход кислорода (диффузионное изменение концентраций при слабых полях, либо температурных градиентах).

Наиболее устоявшимся предположением перехода из «ON» в «OFF» [52, 69, 77, 116-118] является разрушение канала окислением никелевых фрагментов при высокой температуре за счет джоулева нагрева. Однако, оценки этого нагрева и процесса окисления делаются по упрощенным моделям передачи тепла и постоянной, зависящей только от температуры, скорости уменьшения радиуса канала при окислении (линейный рост слоя окисления).

Задачей настоящего исследования является по данным эксперимента произвести численный расчет тепловых и диффузионных процессов при переходах «OFF-ON» и «ON-OFF» с учетом зависимости коэффициента теплоемкости, теплопроводности, электропроводности и коэффициента

диффузии от температуры, передачей тепла в радиальном направлении и через электроды и учетом потерь тепла на плавление NiO. Результаты расчетов позволят обосновать и уточнить механизмы переходов и дать для них численные оценки.

2 ДАННЫЕ ЭКСПЕРИМЕНТА. АНАЛИТИЧЕСКИЕ ОЦЕНКИ УПРОЩЕННЫХ МОДЕЛЕЙ

2.1 Экспериментальное исследование Pt/NiO/Pt структуры

Основной задачей проведенных исследований является анализ физических процессов униполярного переключения MOM структуры Pt/NiO/Pt, проведение аналитических оценок и численного моделирования с целью уточнения моделей этапов переключения и получения их количественных оценок. Анализ основан на проведенных экспериментальных исследованиях по синтезу и переключению Pt/NiO/Pt структуры благодаря помощи коллег лаборатории микро- и нанoeлектроники ПетрГУ.

Синтез Pt/NiO/Pt структур проводился аналогично методике работ [119]. Пленка NiO толщиной окисла в интервале 50 нм, наносилась RF магнетронным распылением Ni мишени (99.99 %) в Ar с добавлением кислорода на магнетронной системе AJA Orion Phase II J. Расстояние между мишенью и подложкой составляло 80-85 мм. Давление в камере до начала распыления доводилось до $3 \cdot 10^{-6}$ Торр, после чего запускался газ смеси аргона с кислородом с нарастанием общего давления до $3 \cdot 10^{-3} \div 5 \cdot 10^{-3}$ Торр с соотношением Ar:O₂ ≈ 3:1. При варьируемой мощности магнетрона 100÷200Вт и температуре подложки ~ 350 °С в течение 10-30 мин происходил процесс напыления пленки NiO, стехиометрия которой контролировалась после напыления измерением сопротивления пленки, а точный анализ состава пленки определял энерго-дисперсионный спектрометр Hitachi SU-1510. Толщина получаемой NiO пленки на предварительном этапе (напыления) контролировалась встроенным в магнетронную систему кварцевым определителем толщины (резонатором), а корректировка толщины проводилась методом эллипсометрии.

Способ изготовления платиновых контактов проводился по методике аналогичной [136] и заключался в следующем. На поверхность напыленной пленки NiO равномерно наносился позитивный резист марки S1805 и

произведен отжиг при $T=100$ °С в течение 1–2 минут. Экспонирование проходило в оптическом литографе μ PG-101 по шаблону.

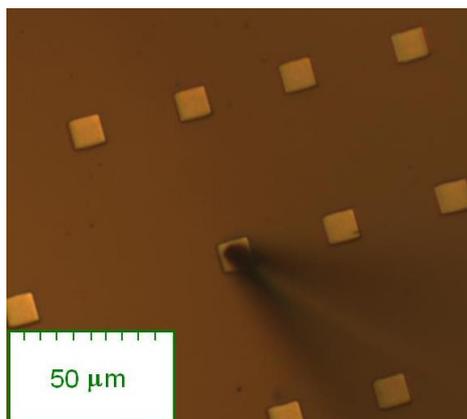


Рисунок 2.1 – Оптическая фотография Pd контактов на поверхности Nb_2O_5 , размером 10×10 мкм. Также на снимке изображен зонд для снятия электрических характеристик

Проявление резиста проводилось в буферном проявителе УПФ-15. Далее, синтезировались контакты методом DC магнетронного распыления из платиновой мишени при нагреве NiO пленки при рабочей температуре не более 100 °С и давлении остаточных паров в рабочей камере менее 10^{-6} Торр. После этого lift-off процессом удалялись не экспонированные участки с образованием контактов на поверхности NiO пленки с площадью от 5×5 мкм² до 50×50 мкм² и толщиной ~ 500 нм (Рис. 2.1).

Для снятия статических ВАХ использовалась методика аналогичная [137, 136] с помощью стенда на основе источника – измерителя Keythley. Схема стенда представлена на рисунке 2.2. Исследуемый образец помещается на зондовую установку, позволяющую устанавливать измерительный зонд на контактную площадку с размером порядка 50 мкм. На структуры подавалось медленно изменяющееся линейно-нарастающее напряжение одной полярности или ток. Скорость нарастания напряжения выбиралась такой, чтобы все релаксационные процессы в структуре успевали завершиться. Для предотвращения необратимого пробоя структуры, ограничивалась величина пропускаемого тока.

Основной особенностью источника-измерителя Keythley Model 2410 является возможность задавать ограничения по току и напряжению в широком диапазоне, что предоставляет широкие возможности для проведения прецизионной электрической формовки канала исследуемых структур, а также для защиты измеряемых структур от выхода рабочей точки в нежелательный диапазон. Для управления стендом использованы компьютерные программы. Данные программы позволяют задавать значения напряжения (или тока) подаваемого на структуру, ограничительного тока, скорость нарастания напряжения или тока, а также проводить серию измерений и отображать результаты в логарифмической шкале.

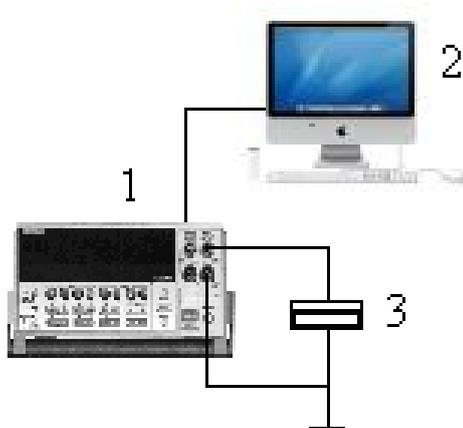


Рисунок 2.2 – Схема стенда. 1- источник-измеритель Keythley Model 2410; 2 – персональный компьютер; 3 – исследуемый образец

Для получения переключателей с устойчивыми характеристиками исходные образцы подвергались электрической формовке, которая как уже отмечалось в обзоре литературы, необходима для перевода структур из исходного высокоомного состояния в новое состояние, в котором наблюдается переключение с устойчивыми характеристиками. Формовка производилась следующим образом: на верхний электрод структуры подавалось линейно-нарастающее напряжение, нижний электрод при этом был заземлен. В процессе формовки возможный ток через структуру был ограничен заранее задаваемым

значением I_0 , а переход структур в новое состояние происходил при некотором пороговом напряжении U_ϕ .

После формовки полученная МОМ структура Pt/NiO/Pt демонстрировала униполярное резистивное переключение с двумя состояниями, которые соответствуют высокоомным (Reset) и низкоомным (Set) ветвям ВАХ (рис. 2.3).

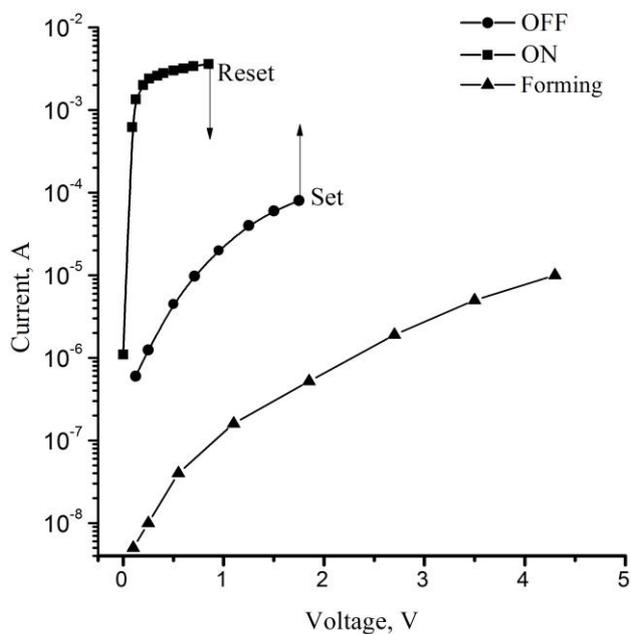


Рисунок 2.3 – Вольтамперные характеристики процесса ЭФ, а так же состояний «ON» и «OFF»

Переключение в высокоомное состояние (Reset процесс), происходит при приложении напряжения переключения: U_{Reset} . Переключение в низкоомное состояние (Set процесс), достигается приложением большего напряжения: U_{Set} . Для предотвращения необратимого пробоя образца в процессе переключения HRS – LRS ток ограничивался либо источником питания ($I_0 = 2 \div 5$ мА), либо балластным сопротивлением $1 \div 2$ кОм. При переключении LRS – HRS ток через структуру ограничивался только выходным сопротивлением 50 Ом. Отношение сопротивлений R_H/R_L составляло порядка $10^2 \div 10^3$.

2.2 Аналитические оценки процессов электроформовки и переключения

Аналитические решения упрощенных моделей, во-первых, позволяют тестировать численные методы, во-вторых, дают предельные случаи и приближенные количественные оценки.

Так одномерный бесконечный цилиндр может быть приближением цилиндра конечной длины при малом радиусе по сравнению с длиной, аналитическое решение с постоянным средним коэффициентом теплопроводности является некоторым приближением решения при меняющемся коэффициенте теплопроводности и т.д.

Структура переключателя приведена на рисунке 2.4.

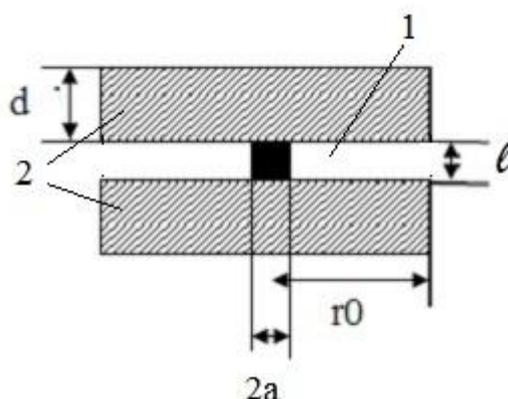


Рисунок 2.4 – Структура переключателя

Имеем два цилиндрических платиновых электрода (2) радиусом $r_0 = 5$ мкм, толщина $d = 500$ нм каждый. Между электродами имеется пленка NiO (1), толщиной $l = 50$ нм. На оси в пленке NiO образуется проводящий канал близкий к структуре Ni, оценочным радиусом $a = 5$ нм ÷ 10 нм.

Можно рассмотреть следующие аналитические оценки задачи моделирования:

1. Стационарное распределение температуры в структуре с заданным объемным выделением тепла Q и комнатной температуре на внешней границе электродов.

2. Нестационарное распределение температуры с включением объемного выделением тепла Q в начальный момент. Установление температуры во времени при включении тока.

3. Ход распределения температуры в структуре во времени при мгновенном пробое (образование канала) и разряде межэлектродной емкости.

4. Оценки диаметра и температуры канала по его проводимости в низкоомном состоянии.

5. Аналитические оценки диффузионного режима окисления.

2.1.1 Стационарное распределение температуры

Задача 1. Нагрев плоского слоя NiO между электродами при формовке (рис.2.5)

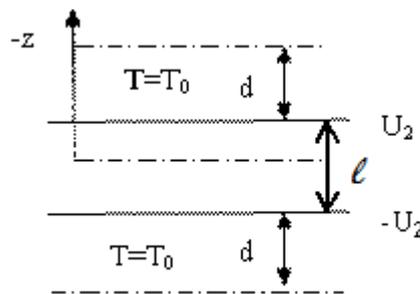


Рисунок 2.5 – Плоский случай с объемным выделением тепла

Принимаем: толщина слоя NiO $l = 50$ нм, напряжение формовки $U_F = 4$ В, ток формовки $I_F = 1 \cdot 10^{-5}$ А, коэффициент теплопроводности NiO

$\lambda_1 = 16 \sqrt{\frac{T_0}{T}} \frac{Вт}{м \cdot град}$. Предполагается, что весь ток формовки проходит через активированный фрагмент 100×100 нм с площадью $S = 10^{-14}$ м². Толщина платиновых электродов $d = 500$ нм, коэффициент теплопроводности $\lambda_2 \approx 71$ Вт/м·град. На внешней границе электродов температура $T = T_0 = 300$ К.

Решение такой составной плоской задачи с переменным λ_1 обратнопропорциональному корню температуры имеет вид [120–122]:

Решение такой составной плоской задачи с переменным λ_1 обратнопропорциональному корню температуры имеет вид [120–122]:

$$T^{1/2} = [T_0']^{1/2} + \frac{Q_1}{4\lambda_{01}(T_0')^{1/2}} \left(\frac{l^2}{4} - z^2 \right), \quad (2.1)$$

где $T_0' = T_0 + \frac{Q_1 d}{2\lambda_2}$ – температура на границе электрода и окисла. Здесь $\lambda_{01} = \lambda_1(T_0) = 16$ Вт/м·град, $Q_1 \approx \frac{I_{exp} U_F}{S \cdot l} = 8 \cdot 10^{16}$ Вт/м³ – объемное выделение тепла в окисле. В результате получим $T_0' = 315$ К, $T(z_0) = 322$ К.

Таким образом, нагрев структуры в режиме формовки мал и не влияет на ее свойства. Вероятно, возникает электрический пробой слоя NiO $E_{пр} \approx 8 \cdot 10^7$ В/м.

Задача 2. Оценка диаметра и температуры канала по его проводимости в низкоомном состоянии

Начальное сопротивление канала согласно вольтамперной характеристике составляло при малых токах $R_0 \approx 100$ Ом. Принимая удельное сопротивление канала при $T \approx T_0 = 300$ К – $\rho_0 \approx 1,1 \cdot 10^{-6}$ Ом·м, получаем оценочный радиус

канала $a = \sqrt{\frac{\rho_0 l}{\pi R_0}} \approx 13 \cdot 10^{-9}$ м. Это более чем в два раза превышает

предполагаемый в [119] чисто никелевый радиуса канала $\sim 5 \cdot 10^{-9}$ м.

Рассмотрим точку на вольтамперной характеристике близкую к точке перехода «ON–OFF»: $U = 0,75$ В, $I = 3$ мА, $R = 250$ Ом. При зависимости для

проводимости канала от температуры $\rho_K = 1,1 \cdot \left[1 + 0,5 \left(\frac{T}{T_{cp}} - 1 \right) \right] \cdot 10^{-6}$ Ом·м

средняя температура канала должна быть $T_{cp} \approx 1200$ К.

Рассмотрим модель чисто цилиндрического растекания тепла в окисле, считая, что на радиусе электрода $r_0 \approx 2,5$ мкм = $2,5 \cdot 10^{-6}$ м температура в окисле при малой его толщине равна $T_0 = 300$ К.

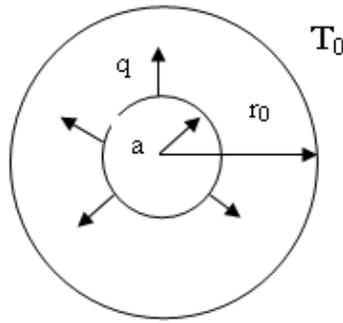


Рисунок 2.6 – Схематичный вид рассматриваемой задачи

Имеем составной цилиндр (рис.2.6). Внутренний цилиндр радиусом « a » (канал тока) с выделением тепла в единице объема в единицу времени « Q » и теплопроводностью λ_1 . Внешний цилиндр радиусом « r_0 » без выделения тепла (оболочка) с коэффициентом теплопроводности λ_2 и заданной температурой на внешней границе $T(r_0) = T_0$. Требуется найти распределение температуры по радиусу.

На границе между оболочкой и токовым каналом выполняется соотношение:

$$q = -\lambda_1 \frac{dT_1}{dr} = -\lambda_2 \frac{dT_2}{dr} = \frac{\pi a^2 Q}{2\pi a} = \frac{Qa}{2}, \quad (2.2)$$

где q – поверхностная плотность потока тепла.

Коэффициент теплопроводности канала примем $\lambda_1 = 24$ Вт/м·град, для окисла $\lambda_2 = 16\sqrt{\frac{T_0}{T}}$ Вт/м·град, объемное выделение тепла в канале

$$Q = \frac{IU}{\pi a^2 l} \approx \frac{0,15 \cdot 10^5 \text{ Вт}}{a^2 \text{ м}^3}. \quad (2.3)$$

Для внешней оболочки из условия $\frac{q \cdot a}{r} = const$ получим –

$$\lambda_2(T) \frac{dT}{dr} = 16\sqrt{\frac{T_0}{T}} \frac{dT}{dr} = \frac{Qa^2}{2r}. \quad (2.4)$$

Интегрируя, получим:

$$\left(\frac{T}{T_0}\right)^{1/2} = 1 + \frac{Qa^2 \ln \frac{r_0}{r}}{4\lambda_{02}T_0}, \quad (2.5)$$

где $\lambda_{02} = \lambda_2(T_0) = 16$ Вт/м·град.

При $r = a$:

$$T^{1/2}(a) = T_0^{1/2} + \frac{Qa^2 \ln \frac{r_0}{a}}{4\lambda_{02}T_0^{1/2}}. \quad (2.6)$$

Отметим, что при $\lambda_2 = \text{const}$:

$$T(a) = T_0 + \frac{Qa^2 \ln \frac{r_0}{a}}{2\lambda_2}. \quad (2.7)$$

Для токового канала аналогично будем иметь:

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} (r\lambda_1 \frac{dT}{dr}) = -Q; \quad \lambda_1 \frac{dT}{dr} = -\frac{Qr}{2}. \quad (2.8)$$

$$T = T(a) + \frac{Q}{4\lambda_1} (a^2 - r^2), \quad (2.9)$$

где $T(a)$ определяется (2.7).

На оси канала:

$$T(0) = T(a) + \frac{Qa^2}{4\lambda_1} \quad (2.10)$$

Из соотношений (2.5), (2.7) и (2.10) получим: $T(a) = 7830$ К, $T(0) = 7990$ К.

Эти значения в три раза превышают температуру плавления NiO и определяются не учетом отвода тепла на электроды. Если считать за r_0 толщину оксидной пленки, то соответственно получим $T(a) = 1260$ К, $T(0) = 1420$ К, что близко к оценочному значению для проводимости $T_{\text{пр}} \approx 1200$ К.

Таким образом, для определения точных значений распределения температуры необходим численный расчет объемного перераспределения тепла.

2.1.2 Нестационарное распределение температуры. Оценка времени растекания тепла в структуре (например, после пробоа)

Нестационарное уравнение теплопроводности имеет вид:

$$c\gamma \frac{\delta T}{\delta t} = \text{div} \lambda \nabla T + Q, \quad (2.11)$$

где λ – коэффициент теплопроводности, c – теплоемкость, γ – плотность, Q – выделяемая мощность в единице объема.

Для решения (2.11) необходимы начальные и граничные условия. В [121] приводится решение задачи установления температуры в длинном полем цилиндре с внешним радиусом « r_0 » и постоянным коэффициентом теплопроводности λ , при поступлении на внутреннюю поверхность радиусом « a » постоянного потока тепла $q' = \frac{Q \cdot a}{2}$. Это соответствует пренебрежением полной теплоемкости внутреннего цилиндра с объемным выделением тепла Q , что близко к действительности при малом « a ». Внешняя поверхность при $r = r_0$ поддерживается при температуре T_0 .

Тогда температура на внутренней границе оболочки определяется выражением:

$$T' = \ln \frac{r_0}{a} - \pi \sum_{n=1}^{\infty} \exp[-(a\alpha_n)^2 t' \cdot \xi_n] \quad (2.12)$$

здесь $T' = \frac{T(a,t) - T_0}{q a / \lambda}$; $t' = \frac{t \cdot \lambda}{a^2 c \gamma}$; $a\alpha_n$ – положительные корни уравнения

$J_1(a\alpha)N_0(r_0\alpha) - N_1(a\alpha)J_0(r_0\alpha) = 0$ определяются соответствующими функциями Бесселя и Неймана [123-126].

Коэффициент ξ_n равен:

$$\xi_n = \frac{J_0^2(r_0\alpha_n)[J_0(r_0\alpha_n)N_1(a\alpha_n) - N_0(r_0\alpha_n)J_1(a\alpha_n)]}{(a\alpha_n)[J_1^2(a\alpha_n) - J_0^2(r_0\alpha_n)]}. \quad (2.13)$$

В таблице 2.1 приведены первые шесть корней $a\alpha_n$, значений соответствующих Бесселевых функций и коэффициентов ξ_n для значения

$r_0/a \approx 10$. Это значение r_0/a является наиболее вероятным исходя из решения стационарной задачи 2.

Таблица 2.1 – Корни $a\alpha_n$, значений соответствующих Бесселевых функций и коэффициентов ξ_n .

	n=1	n=2	n=3	n=4	n=5	n=6
$a\alpha_n$	0,24481	0,57258	0,90957	1,251	1,5950	1,9403
$N_0(r_0\alpha)$	0,50504	-0,325765	0,23889	-0,16967	0,1046	-0,04277
$N_1(r_0\alpha)$	0,1227	-0,09674	0,12650	-0,15542	0,1735	-0,17715
$J_0(r_0\alpha)$	-0,02225	0,06824	-0,11323	0,14853	-0,17015	0,17598
$J_1(r_0\alpha)$	0,509549	-0,32105	0,023303	-0,163875	0,099322	-0,0382
$N_0(a\alpha)$	-0,9458	-0,34382	0,01394	0,25880	0,41868	0,50301
$N_1(a\alpha)$	-2,7560	-1,31148	-0,86383	-0,583639	-0,35076	-0,14102
$J_0(a\alpha)$	0,98508	0,91971	0,80362	0,645395	0,45825	0,25841
$J_1(a\alpha)$	0,12149	0,27471	0,40934	0,51086	0,56939	0,57985
ξ_n	-0,36850	-0,12768	-0,063765	-0,03756	-0,0265	-0,01715

Члены в сумме с номерами $n > 6$ дают малый вклад из-за быстрого спада экспоненты и уменьшения ξ_n . В таблице 2.2 приведены относительные значения температуры в различные моменты времени.

Таблица 2.2 – Относительные значения температуры в различные моменты времени.

t'	0,5	1,0	2,0	5,0	10	50	∞
T'	0,6204	0,8040	1,0235	1,3625	1,6516	2,245	2,3026

Температура достигает 0,71 установившегося значения при $t' \approx 10$. Это соответствует $t_{уст} = \frac{t' a^2 c \gamma}{\lambda} \approx 1,2 \cdot 10^{-9} c$ при средних по температуре значений для NiO $(c\gamma)_{cp} \approx 6 \cdot 10^6$ Дж/м³град; $\lambda_{cp} \approx 8$ Вт/м·град; $a \approx 13 \cdot 10^{-9}$ м. С учетом ухода тепла кроме радиального потока еще вдоль оси z на электроды это время может быть меньше.

В начальный момент времени после пробоя, когда радиус канала мал $a \sim 1 \cdot 10^{-9}$ м, время установления температуры по радиусу существенно уменьшается до значений менее 10^{-10} с.

2.1.3 Оценка времени разряда межэлектродной емкости при формовке

Во время формовки происходит скачкообразный переход из состояния изолятора $I = 1 \cdot 10^{-5}$ А, $U_0 \approx 4$ В, $R \approx 4 \cdot 10^5$ Ом в проводящее состояние, имеющее параметры при контролируемом токе $I = 1 \cdot 10^{-3}$ А, $U \approx 0,4$ В, $R \approx 400$ Ом.

Кроме внешнего тока при резком уменьшении напряжения добавляется ток разряда межэлектродной емкости:

$$I_C = \frac{U_0 - U}{R} e^{-t/RC} \quad (2.14)$$

с постоянной спада $t_c \cong RC$, здесь $C = \frac{\epsilon \epsilon_0 S}{l}$, где S – площадь электродов, l – межэлектродное расстояние.

При $\epsilon \approx 12$, $S = 50 \cdot 10^{-6} \cdot 50 \cdot 10^{-6} \text{ м}^2 = 2,5 \cdot 10^{-9} \text{ м}^2$, $\epsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{12} \text{ Ф/м}$, $l = 5 \cdot 10^{-8} \text{ м}$:

$$C = \frac{12 \cdot 8,85 \cdot 10^{12} \cdot 2,5 \cdot 10^{-9}}{5 \cdot 10^{-8}} = 5,3 \cdot 10^{-12} \text{ Ф}.$$

Сопротивление проводящего канала при пробое резко и неконтролируемо изменяется. Принимая его значение $R \approx 400$ Ом, получим постоянную разряда конденсатора $t_c = RC \approx 2 \cdot 10^{-9}$ с.

При уменьшении площади электродов до $5 \times 5 \text{ мкм}^2$ это время уменьшается на 2 порядка, но остается сравнимым с временем установления температуры после пробоя $t < 1 \cdot 10^{-10}$ с.

2.1.4 Упрощенная аналитическая модель распространения тепла с плавлением окружающего диэлектрика и расширением тонкого цилиндрического канала с током

Сделаем следующие упрощения:

1) Пренебрегаем потерями потенциала и тепла через электроды, т.е. тепло передается только радиально от тонкого цилиндрического канала с током

с плавлением диэлектрика. Джоулево тепло выделяется однородно в объеме канала.

2) Предполагаем однородность плавления по оси z , т.е. сохранение одномерной модели с одной координатой – радиус.

3) Начальные условия после пробоя: канал из жидкого никеля радиусом « a » с температурой, равной температуре плавления NiO – 2230 К. Вокруг изолятор NiO с внешним радиусом r_0 , на внешней границе которого поддерживается нормальная температура $T_0 = 300$ К.

4) Из-за малого начального радиуса канала время радиального установления температуры существенно меньше времени разряда конденсатора.

5) Задано: начальный радиус « a » и длина « l » канала, межэлектродная емкость $C_{\text{смк}}$, начальное напряжение на емкости U_0 , внешний радиус изолятора с учетом, что тепло может уходить и по оси z , примем $r_0 = l$, $a = (1 \div 2) \cdot 10^{-9}$ м, $l = 5 \cdot 10^{-8}$ м, $C_{\text{смк}} = 5,3 \cdot 10^{-12} (0,053 \cdot 10^{-12})$ Ф, $U_0 = 4,3$ В, $c\gamma \approx 6 \cdot 10^6$ Дж/м³град, $\rho_{\text{Ni}} = 6 \cdot 10^{-6}$ Ом·м, $\lambda_{\text{NiO}} = 6$ Вт/м·град (при высокой температуре вблизи канала).

Аналитическое решение такой задачи позволит оценить распределение тепла и плавления весьма близкой к начальному времени реальной задачи и выявить влияние начальных условий.

Рассмотрим процессы выделения и потерь тепла. Джоулево выделение тепла в канале в единицу времени равно:

$$N = \frac{U_C^2}{R} = \frac{U_C^2 \pi r^2}{\rho_{\text{Ni}} l}. \quad (2.15)$$

Мощность выделения тепла в единице объема:

$$Q = \frac{N}{l \pi r^2} = \frac{U_C^2}{\rho_{\text{Ni}} l^2}. \quad (2.16)$$

Часть этой мощности тратится на плавление границы NiO:

$$N_{\text{пл}} = 2 \pi r l \Delta H_{\text{пл}} \cdot \frac{dr}{dt} \text{ (условие Стефана [122])}. \quad (2.17)$$

$\Delta H_{пл} = 5 \cdot 10^9$ Дж/м³, а также на его нагрев $\Delta H_{нагр} \approx c\gamma(T_{пл} - T_0)$. Оставшаяся часть передается теплопроводностью через окружающий диэлектрик.

Имеется решение установившейся передачи тепла через полый цилиндр при $\lambda = \text{const}$ (п.2.2.1. задача 2), связывающее плотность потока тепла q через внутреннюю поверхность с разностью температур поверхностей цилиндра:

$$T_{nl} - T_0 = \frac{qr}{\lambda_{NiO}} \ln \frac{r_0}{r}, \quad (2.19)$$

где r, r_0 – внутренний и наружный радиусы цилиндра.

Тогда поток тепла за счет теплопроводности изнутри:

$$N_\lambda = 2\pi r l q = \frac{2\pi l \lambda_{NiO} (T_{nl} - T_0)}{\ln \frac{r_0}{r}}. \quad (2.20)$$

Условие сохранения тепла:

$$N = N_{nl} + N_\lambda + N_{нагрев}, \quad (2.21)$$

$$\text{т.е. } \frac{U_C^2 \pi r^2}{\rho_{Ni} l} = \frac{2\pi l \lambda_{NiO} (T_{nl} - T_0)}{\ln \frac{r_0}{r}} + 2\pi r l (\Delta H_{nl} + c\gamma(T_{nl} - T_0)) \cdot \frac{dr}{dt} \quad (2.22)$$

$$\frac{dr}{dt} = \frac{U_C^2 r}{2\rho_{Ni} l^2 \Delta H} - \frac{\lambda_{NiO} (T_{nl} - T_0)}{r \Delta H \ln \frac{r_0}{r}} \quad (2.23)$$

Здесь пренебрегается перегревом жидкого никеля выше температуры плавления из-за малого размера канала и хорошей теплопроводности никеля, кроме того $\Delta H = \Delta H_{пл} + c\gamma(T_{пл} - T_0)$. Чтобы происходило плавление границы NiO и расширение канала, необходимо, чтобы $N > N_\lambda$, т.е.:

$$\frac{U_C^2 r^2}{\rho_{Ni}} \geq \frac{2l^2 \lambda_{NiO} (T_{nl} - T_0)}{\ln \frac{r_0}{r}} \quad (2.24)$$

Знак равенства в (2.24) определяет минимальный радиус канала:

$$r_{\min}^2 \ln \frac{r_0}{r_{\min}} = \frac{2l^2 \lambda_{NiO} \rho_{Ni} (T_{nl} - T_0)}{U_0^2} = 18 \cdot 10^{-18} \text{ м}^2 \quad (2.25)$$

Отсюда при выбранных начальных условиях $r_{\min} = 2,1 \cdot 10^{-9}$ м. При меньшем радиусе канала в результате пробоя dr/dt будет отрицательно и канал застынет.

Рассмотрим вариант $a > r_{\min}$. Зависимость напряжения конденсатора от времени определяется разрядным током:

$$\frac{dU}{dt} = -\frac{I}{C_{\text{емк}}} = \frac{-U(t)}{R(t)C_{\text{емк}}} \quad (2.26)$$

с решением:

$$U_C(t) = U_0 \exp\left(-\frac{1}{C_{\text{емк}}} \int_0^t \frac{dt}{R(t)}\right) = U_0 \exp\left(-\frac{\pi}{C_{\text{емк}} \rho_{\text{Ni}} l_0} \int_0^t r^2(t) dt\right) \quad (2.27)$$

Подстановка (2.27) в (2.23) дает интегро-дифференциальное уравнение, решение которого определяет зависимость радиуса расплавленного канала от времени.

$$\frac{dr}{dt} = \frac{U_0^2 \cdot r \exp\left(-\frac{2\pi}{C_{\text{емк}} \rho_{\text{Ni}} \cdot l_0} \int_0^t r^2(t) dt\right)}{2\rho_{\text{Ni}} l^2 \Delta H} - \frac{\lambda_{\text{NiO}}(T_{\text{пл}} - T_0)}{r \Delta H \ln \frac{r_0}{r}} \quad (2.28)$$

Численное решение (2.28) при указанных параметрах слабо зависело от начального радиуса в его пределах $a = (2 \div 4) \cdot 10^{-9}$ м. Максимальный радиус расплава и время его достижения составляли:

$$r_{\text{пл}} = 72 \cdot 10^{-9} \text{ м}, t_{\text{пл}} = 5,3 \cdot 10^{-10} \text{ с при } C_{\text{емк}} = 5,3 \cdot 10^{-12} \text{ Ф};$$

$$r_{\text{пл}} = 5,1 \cdot 10^{-9} \text{ м}, t_{\text{пл}} = 1,2 \cdot 10^{-10} \text{ с при } C_{\text{емк}} = 0,053 \cdot 10^{-12} \text{ Ф}.$$

Если бы вся заполненная в емкости энергия тратилась на нагрев с плавлением, т.е. $\frac{C_{\text{емк}} U^2}{2} = \pi r_{\text{пл}}^2 l \cdot \Delta H$, то радиус расплава был бы $r_{\text{пл}} = 134 \cdot 10^{-9}$ м и $r_{\text{пл}} = 13,4 \cdot 10^{-9}$ при $C_{\text{емк}} = 5,3 \cdot 10^{-12}$ Ф и $C_{\text{емк}} = 0,053 \cdot 10^{-12}$ Ф соответственно. Это указывает на то, что большая часть энергии уходит за счет теплопроводности.

Упрощенная модель имеет недостатки, т.к. мы ограничиваем область цилиндром и считаем, что температура постоянная по длине всего цилиндра. Реальное расплавление канала ввиду отвода тепла на оси z в электрод будет неоднородное по z с возникновением «узкого места» на стыке канала с электродом. Этот эффект не дает так быстро расти току, увеличит время разряда конденсатора и уменьшит окончательный радиус расплавления на

стыке с электродом. Рассмотренная модель расплавления оксида учитывает только разряд паразитной емкости. Учет дополнительного тока от источника увеличит полученный радиус расплавления.

2.1.5 Аналитические оценки диффузионного режима окисления

В работе [127] предложена возможность осуществления диффузионного механизма перехода в состояние OFF за счет диффузии кислорода, металла и их вакансий по границам граней. Для времени перехода предлагается выражение

$$t_{res} = \frac{d^2}{D_0} \exp\left(\frac{E_A}{kT}\right), \quad (2.29)$$

где d - диаметр канала, $E_A = 1,4$ эВ – энергия активации, $D_0 = (10^{-5} \div 10)$ см²/с.

Однако конкретный механизм диффузионного перекрытия канала совместно с изменением параметров канала в этом процессе не рассматривался.

Возможны три варианта диффузии, приводящие к исчезновению металлической проводимости канала: непосредственная диффузия кислорода в канал, диффузия никелевых вакансий в канал и обратная диффузия атомов никеля из канала. По данным [102, 110] наибольший коэффициент диффузии в монокристалле NiO (на 2–3 порядка) при характерных температурах разогрева канала ~ 1000 К имеет диффузия никелевых вакансий:

$$D_{Ni}^{vac} = 1.9 \cdot 10^{-2} \cdot \exp\left(-\frac{34540}{RT}\right), D_{Ni} = 1.5 \cdot 10^{-2} \cdot \exp\left(-\frac{58000}{RT}\right), D_O = 6.2 \cdot 10^{-4} \cdot \exp\left(-\frac{57500}{RT}\right),$$

где D_{Ni}^{vac} , D_{Ni} и D_O – коэффициенты диффузии (см²/с) никелевых вакансий, никеля и кислорода соответственно, R – универсальная газовая постоянная (кал·К⁻¹).

Еще выше диффузия никелевых вакансий осуществляется по граням поликристалла [102]:

$$D_{NiGB}^{vac} = 1.0 \cdot 10^{-2} \cdot \exp\left(-\frac{28200}{RT}\right) \quad (2.30)$$

Этот механизм можно считать основным.

Сильная экспоненциальная зависимость коэффициента диффузии от температуры обуславливает пороговый характер окисления (растворения) канала от уровня тока.

Рассмотрим диффузионный механизм окисления при тонком (плоском) слое окисла. В данном процессе имеются две движущиеся границы: граница окисления,двигающаяся вглубь канала, и граница ухода никелевых вакансий из NiO. Так как процесс окисления лимитируется процессом ухода кислорода из прилегающей к каналу области NiO, то концентрация избытка кислорода в этой области соответствует концентрации его недостатка в канале. Тогда можно считать, что скорости обеих подвижных границ близки, но противоположны по знаку.

Диффузионный поток вакансий nv (n и v – концентрация и скорость никелевых вакансий) описывается выражением:

$$nv = -D \frac{\partial n}{\partial x}, \quad (2.31)$$

где координату будем отсчитывать от первоначальной границы канала. Уравнение непрерывности при отсутствии химических реакций внутри NiO есть:

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \text{div}(nv) = 0. \quad (2.32)$$

Подставляя (2.31) в (2.32) получим диффузионное уравнение:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -D \frac{\partial^2 n}{\partial x^2}. \quad (2.33)$$

Пусть ξ – координата границы окисления, $(-\xi)$ – координата границы ухода вакансий из NiO. Тогда граничные условия уравнения (2.33) есть $n(x > \xi) = 0$, $n(x \leq -\xi) = n_0$, то есть вакансии отсутствуют внутри канала, а их концентрация равна равновесному значению n_0 в глубине NiO до их границы ухода в канал. Аналитическим решением уравнения (2.33) является [128]:

$$n = n_0 - C \cdot F\left(\frac{x + \xi}{2\sqrt{Dt}}\right), \quad (2.34)$$

где $F(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \int_0^z e^{-z^2} dz$ – функция ошибок.

Решение (2.34) показывает, что концентрация не меняется при пропорциональности координат корню от времени. Положим $\xi = \alpha\sqrt{t}$, тогда

$$\frac{d\xi}{dt} = \frac{\alpha^2}{2\xi}, \quad (2.35)$$

где α – коэффициент пропорциональности, а постоянная C в (2.34), определяемая условием $n(\xi)=0$, есть

$$C = \frac{n_o}{F(\alpha/\sqrt{D})}. \quad (2.36)$$

Для определения α используем условие на границе окисления:

$$n_o \frac{d\xi}{dt} = -D \frac{\partial n}{\partial x}. \quad (2.37)$$

Подставляя (2.34) и (2.35) в (2.37) получим трансцендентное уравнение α от D :

$$\frac{\alpha}{\sqrt{D}} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{\exp\left(-\frac{\alpha^2}{D}\right)}{F\left(\frac{\alpha}{\sqrt{D}}\right)}. \quad (2.38)$$

Решением (2.38) является значение $\alpha = 0,80 \cdot \sqrt{D}$, тогда $\xi = 0,80\sqrt{Dt}$ и

$$\frac{d\xi}{dt} = 0,32 \cdot \frac{D}{\xi}, \quad (2.39)$$

а для времени перекрытия окислом заданной толщины r_o имеем

$$t_o = 1,56 \frac{r_o^2}{D}. \quad (2.40)$$

Отметим, что при фиксированном значении концентрации на начальной границе $n(0,t)=n_o$ аналогичное рассмотрение дает

$$\xi = 1,24 \cdot \sqrt{Dt}, \quad \frac{d\xi}{dt} = 0,769 \cdot \frac{D}{\xi} = 0,62 \cdot \sqrt{\frac{D}{t}}, \quad (2.41)$$

$$t_o = 0,65 \cdot \frac{r_o^2}{D}$$

Последние значения совпадают с решениями задачи замерзания воды при постоянной температуре на поверхности [121].

В цилиндрической геометрии аналитические решения уравнения

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \cdot \left(\frac{\partial^2 n}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial n}{\partial r} \right) \quad (2.42)$$

с граничными условиями, соответствующими окислению цилиндра с наружной поверхности, отсутствуют даже при постоянной концентрации на поверхности. В задачах теплопроводности имеется приближенное решение для замерзания (или оттаивания) полого цилиндра изнутри с постоянной температурой на внутренней поверхности [120, 121]. В качестве аппроксимации предлагаются квазистационарные решения, когда для распределения по координате используется стационарное решение, а зависимость от времени определяется движением границы замерзания.

Применим этот метод для задачи окисления цилиндрического канала. Пусть r_0 – начальный радиус канала, ξ – радиус поверхности окисления r_{vac} – радиус границы ухода вакансий из NiO, а $n(\xi)=0$ и $n(r_{vac})=n_o$. Отметим, что для сохранения потока должно выполняться условие $r_{vac} = \sqrt{2} \cdot r_0$, которое есть следствие равенства объемов занимаемых первоначальным каналом и областью, прилегающей к нему на расстоянии радиуса r_{vac} .

Решением стационарного уравнения (2.37) при $\partial n / \partial t = 0$ будет функция:

$$n(r) = n_o \cdot \frac{\ln\left(\frac{r}{\xi}\right)}{\ln\left(\frac{r_{vac}}{\xi}\right)}. \quad (2.43)$$

Движение внутренней границы определяется условием окисления, где x меняется на радиальную переменную r :

$$n_o \frac{d\xi}{dt} = -D \cdot \left. \frac{\partial n}{\partial r} \right|_{r=\xi}. \quad (2.44)$$

Тогда для скорости окисления получим:

$$\frac{d\xi}{dt} = -\frac{D}{\xi \cdot \ln\left(\frac{r_{vac}}{\xi}\right)} = -\frac{2D}{\xi \cdot \ln\left(\frac{2r_0^2}{\xi^2} - 1\right)}. \quad (2.45)$$

Интегрируя (2.45) по ξ от r_0 до 0, получим время полного окисления канала:

$$t_o = \frac{\ln 2}{2D} \cdot r_o^2 = 0.347 \cdot \frac{r_o^2}{D}. \quad (2.46)$$

Можно ожидать, что квазистационарное приближение дает заниженное значение (2.46), так как для установления стационарного состояния (2.43) требуется дополнительное время. Подтверждение этому можно получить, переходя в (2.45) к предельному значению $\xi \rightarrow r_0$:

$$\xi \ln\left(\frac{r_{vac}}{\xi}\right) \rightarrow (r_{vac} - \xi) = 2 \cdot (r_0 - \xi), \text{ что соответствует плоской геометрии. В}$$

этом случае $\frac{d\xi}{dt} = -\frac{0,5 \cdot D}{(r - \xi)}$, в то время как точное решение для плоского слоя

равно $\frac{d\xi}{dt} = -\frac{0.32 \cdot D}{\xi}$, где ξ соответствует в цилиндре значению $(r_0 - \xi)$.

Для уточнения значений (2.45) и (2.46) нами произведено численное решение нестационарного уравнения (2.42). Введем безразмерные переменные:

$$n' = \frac{n}{n_o}, \quad r' = \frac{r}{r_o}, \quad \xi' = \frac{\xi}{r_o}, \quad \tau = \frac{D}{r_o^2} t.$$

Тогда уравнение (2.42) и условие (2.37) запишутся в виде

$$\frac{\partial n'}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 n'}{\partial r'^2} + \frac{1}{r'} \cdot \frac{\partial n'}{\partial r'}, \quad \frac{d\xi'}{d\tau} = -\frac{\partial n'}{\partial r'} \Big|_{r'=\xi'}. \quad (2.47)$$

Начальные условия задаются как $n' = 0$ при $0 \leq r' < 1$ и $n' = 1$ при $r' \geq 1$. Расчет производился методом конечных разностей на счетной области $0 \leq r' \leq \sqrt{2}$ с выполнением условия устойчивости $\Delta\tau < (\Delta r')^2/2$. На границе окисления концентрация обнулялась, а избыток накапливался до значения $\Delta n'=1$. После этого концентрация начинала рост в этой точке, а граница

окисления переносилась в соседнюю точку. Рассчитывались скорость границы окисления и время полного окисления канала.

Результаты вычислений дают значения

$$t_o = 0,64 \cdot \frac{r_o^2}{D}. \quad (2.48)$$

Скорость границы окисления при $\xi \leq r_o$ равна $\frac{d\xi}{dt} \approx 0,32 \cdot \frac{D}{(r_o - \xi)}$, а при

$\xi \rightarrow 0$ она немного уменьшается. В тоже время аналогичное численное решение уравнения (2.33), соответствующее плоской геометрии, дает значения, совпадающие с аналитическим решением (2.39 – 2.41).

Оценим время перехода «ON–OFF» по (2.38) при радиусе канала $r_o = 13 \cdot 10^{-9}$ м, полученному по проводимости канала в (2.2.1). Для коэффициента диффузии используем соотношение (2.30) для диффузии никелевых вакансий по граням поликристалла:

$$D = 1 \cdot 10^{-6} \exp\left(-\frac{14200}{T}\right) \text{ м}^2/\text{с}.$$

Результаты расчета приведены в таблице 2.3.

Таблица 2.3 – Время окисления канала для различных температур

T, К	600	800	1000	1200
t_0	2 с	5,5 мс	0,16 мс	15 нс

Сравним эти данные с экспериментальными измерениями. В работе [129] исследовался переход из «ON» в «OFF» структуры Pt/NiO/Pt со слоем NiO толщиной $l = 60$ нм. При подаче прямоугольного импульса напряжения $U = 0,9$ В время задержки исчезновения проводимости канала было в пределах от сотен микросекунд до нескольких миллисекунд. Оценочный радиус канала $r_o \approx 20$ нм. Температура при выполнении (2.38) близка к 900 К при $t_0 \approx 1,5$ мс, что близко к экспериментальным данным.

С другой стороны, при подаче существенно большего напряжения $1,6 \div 3,7$ В на структуру $l=37$ нм [77] измеренное время перехода в «OFF»-состояние сильно уменьшалось с ростом напряжения $t_0 = 5$ мкс \div 30 нс за счет роста температуры до $1100 \div 1150$ К.

2.1.6 Выводы по аналитическим оценкам

- Нагрев структуры в режиме формовки мал и не влияет на ее свойства. Возникает электрический пробой пленки при напряженности поля $E_{пр} \approx 8 \cdot 10^7$ В/м, соответствующей стримерному пробую;
- При радиусе образовавшегося при пробое проводящего канала менее $1 \div 2$ нм сильный градиент температуры отводит все выделяющееся тепло, и расширения канала за счет плавления не происходит;
- При больших $1 \div 2$ нм первоначальных радиусах канала разряд даже малой паразитной емкости электродов $C_{емк} = 0,053$ пФ приводит к плавлению окисла NiO расширению канала до ~ 5 нм, а при $C_{емк} = 5,3$ пФ – до 70 нм за время $(1 \div 5) \cdot 10^{-10}$ с;
- Время радиального установления температуры за счет теплопроводности составляет $\sim (1 \div 10) \cdot 10^{-10}$ с при радиусах канала ($2 \div 13$ нм) и сравнимо со временем разряда соответствующей паразитной емкости;
- Нагрев канала в состоянии «ON» при токе ~ 3 мА и радиусе ~ 13 нм при задании внешней границы с температурой 300 К порядка толщины пленки дает значение температуры в канале 1200-1400 К;
- Время диффузии никелевых вакансий при постоянных температурах канала и окружающего диэлектрика $T_{ср} \approx 800 \div 1200$ К составляет $5,5$ мс \div 15 нс, что существенно превышает время установления температуры $(1 \div 10) \cdot 10^{-10}$ с.

Полученные количественные оценки параметров процессов основаны на приближенных моделях и требуют уточнения с учетом неоднородного распределения температуры и соответствующим изменением коэффициентов

электропроводности, теплопроводности и диффузии по радиусу и толщине структуры.

Однако они подтверждают положения о расширении проводящего канала за счет расплавления окисла при переходе «OFF–ON» и диффузионного окисления канала никелевыми вакансиями при переходе «ON–OFF». В обоих переходах определяющую роль играют тепловые процессы нагрева и передачи тепла.

3 МЕТОДИКА ЧИСЛЕННОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ

3.1 Постановка задачи. Исходные уравнения

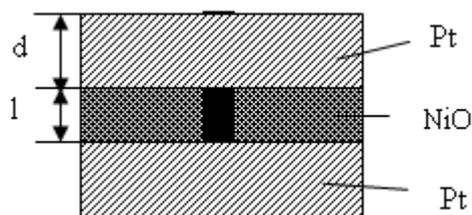


Рисунок 3.1 – Схема структуры

Пусть имеем два цилиндрических платиновых электрода, толщиной $d=500$ нм и диаметром 5мкм либо 50мкм (рис.3.1). Между электродами пленка из NiO толщиной $l=50$ нм. При формовке при медленном увеличении напряжения до $V_F \sim 4 \div 4,3$ В происходит пробой пленки с образованием проводящего канала с начальным радиусом $a = (1 \div 4)$ нм.

На основании литературного обзора и аналитических оценок основным механизмом перехода «OFF–ON» предполагается расширение проводящего канала после пробоя за счет быстрого выделения тепла до плавления NiO и объединения никелевых фрагментов и электролиза расплава в сильном электрическом поле с общим радиусом проводящего канала, определяемого размером расплавления. Переход из «ON–OFF» предполагается окислением канала при повышении температуры джоулевым нагревом путем диффузии никелевых вакансий из окружающего NiO.

При моделировании необходимо численное решение нестационарной системы уравнений для температуры, плотности тока и концентрации никелевых вакансий.

$$\frac{\partial(C_v T)}{\partial t} = \nabla(\lambda \nabla T) + \sigma(\nabla U)^2; \operatorname{div} j = \nabla(\sigma \nabla U) = 0; \frac{\partial n}{\partial t} = \nabla(D \nabla n) \quad (3.1)$$

Здесь T , U , j – температура, потенциал и плотность тока, C_v , λ , σ , D – объемная теплоемкость, теплопроводность, электропроводность и коэффициент

диффузии никелевых вакансий. Все параметры зависят от температуры, времени и координаты.

Дополнительно необходимо учитывать фазовые переходы на границе проводящий канал – диэлектрик с накоплением тепла при плавлении и накоплением никелевых вакансий при окислении.

Система (3.1) в цилиндрической геометрии с радиальной r и аксиальной z (вдоль оси канала, $z = 0$ – середина пленки) координатами имеет вид:

$$\frac{\partial}{\partial t}(C_v T) = \frac{\partial}{\partial r} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\lambda}{r} \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right) + \sigma \left(\frac{\partial U}{\partial r} \right)^2 + \sigma \left(\frac{\partial U}{\partial z} \right)^2 \quad (3.2)$$

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(\sigma \frac{\partial U}{\partial r} \right) + \frac{\sigma}{r} \frac{\partial U}{\partial r} + \frac{\partial}{\partial z} \left(\sigma \frac{\partial U}{\partial z} \right) = 0 \quad (3.3)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial r} \left(D \frac{\partial n}{\partial r} \right) + \frac{D}{r} \frac{\partial n}{\partial r} + \frac{\partial}{\partial z} \left(D \frac{\partial n}{\partial z} \right) \quad (3.4)$$

Решение системы производилась методом конечных разностей при заданных граничных и начальных условиях.

3.2 Дискретизация расчетной области и производных. Граничные условия

Для численного решения уравнений (3.2–3.4) необходима дискретизация области структуры и производных.

Ввиду симметрии структуры относительно середины слоя NiO рассмотрим разрез ее верхней части (рисунок 3.2).

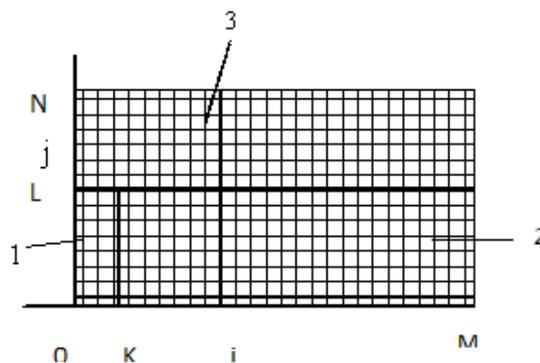


Рисунок 3.2 – Схема расчетной области

Расчетная область представляет верхнюю часть цилиндра, разрезанную посередине слоя NiO ввиду симметричности к нижней части. Область 1 – проводящий канал, 2 – диэлектрик (NiO), 3 – электрод.

Разобьем всю область на ячейки $\Delta x \cdot \Delta y$ с фиксированными значениями параметров в центрах ячеек.

Номера ячеек по радиусу "i" по оси Z – "j". При прогреве ячейки области «2» у границы с областью «1» до температуры плавления и выделения в ней тепла, соответствующего теплоте плавления, вся ячейка переходит в область «1». И, наоборот, при накоплении в граничной ячейке области «1» никелевых вакансий до полного окисления, она переходит в область «2».

На нижней плоскости $z = 0$ (середина слоя NiO) считаем потенциал $U = 0$;

$$\frac{\partial T}{\partial z} = 0; \frac{\partial \sigma}{\partial z} = 0.$$

На верхней поверхности электрода $U = \frac{U_C}{2}$, где U_C – напряжение на межэлектродной емкости. На верхней и боковой поверхности структуры температура равна комнатной $T = T_0 = 300$ К.

Толщина и радиус электрода при их значениях много больших диаметра и длины никелевого канала слабо влияют на процессы передачи тепла и тока.

Примем радиус расчетной области близким к толщине электрода – 500 нм, что в 20 раз превышает расчетную область по толщине пленки NiO ($l/2$).

При моделировании перехода «ON–OFF» задается первоначальный радиус канала с нулевой концентрацией никелевых вакансий. Вне этого радиуса принимается одинаковая концентрация вакансий, равная ее недостатку в канале для его окисления. Минимальный шаг пространственной сетки, чтобы на первоначальном радиусе канала укладывалось несколько ячеек, примем одинаковый по радиусу и толщине $h = 0,25$ нм. Это дает очень большое количество ячеек $4 \cdot 10^6$ и требует большое количество машинного времени счета.

Уменьшить количество ячеек и соответственно время счета, можно применив неоднородную сетку. Удобно использовать шаг, увеличивающийся по геометрической прогрессии со знаменателем $m = 1,01$:

$$h_i = h \cdot m^{i-1} \quad (3.5)$$

Для радиусов центра ячеек будем иметь:

$$r_i = h\beta_i, \text{ где } \beta_i = \frac{m^i - 1}{m - 1} - \frac{m^{i-1}}{2} = \frac{m^i + m^{i-1} - 2}{2(m - 1)}. \quad (3.6)$$

Таблица 3.1 – значения радиуса и толщины расчетной области в зависимости от значения i узла

i	4	8	10	20	41	241	306	311	395	464
r_i/h	4,06	8,29	10,46	22	50,38	1000,2	2000,6	2107,7	4992,6	10018
z_i/h	1,0406	1,0829	1,1046	1,220	1,5038	11,002	21,006	22,08	50,926	101,18

Таким образом, при том же h на первоначальном радиусе уложится $8(4)$ ячеек, на полудлине канала ~ 70 , на $r_0 \sim 306$ ячеек, что дает на всей расчетной области 95477 ячеек, что в 41,9 раза меньше количества ячеек при равномерной сетке. Это дает возможность уменьшить шаг по времени для повышения точности вычислений и существенно уменьшить время счета.

Производные дискретизировались стандартным способом второго порядка малости [130]:

$$\frac{\partial T_{i,j}}{\partial r} \rightarrow \frac{T_{i+1,j} - T_{i-1,j}}{2h_i}; \quad \frac{\partial T_{i,j}}{\partial z} \rightarrow \frac{T_{i,j+1} - T_{i,j-1}}{2h_j} \quad (3.7)$$

$$\frac{\partial^2 T_{i,j}}{\partial r^2} \rightarrow \frac{T_{i+1,j} - 2T_{i,j} + T_{i-1,j}}{h_i^2}; \quad \frac{\partial^2 T_{i,j}}{\partial z^2} \rightarrow \frac{T_{i,j+1} - 2T_{i,j} + T_{i,j-1}}{h_j^2}$$

На оси радиальная первая производная для всех переменных равна нулю.

На внешнем радиусе r_0 первая производная по координате $\frac{\partial U}{\partial r}$ принималась

равной нулю, что определяло граничный потенциал:

$$\frac{\partial U_{m,j}}{\partial r} \rightarrow \frac{3U_{m,j} - 4U_{m-1,j} + U_{m-2,j}}{2h_{m-1}} = 0; \quad U_{m,j} = \frac{4U_{m-1,j} - U_{m-2,j}}{3}.$$

$$T_{0,j} = \frac{4T_{1,j} - T_{2,j}}{3}; U_{0,j} = \frac{4U_{1,j} - U_{2,j}}{3}; n_{0,j} = \frac{4n_{1,j} - n_{2,j}}{3} \quad (3.8)$$

Теперь рассмотрим дискретизацию сложных производных с нелинейными коэффициентами $\frac{\partial}{\partial r} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial r} \right)$.

При зависящей от температуры теплопроводности применим консервативный интегро-интерполяционный метод с выполнением закона сохранения энергии [130].

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial r} \right)_{i,j} = \frac{2\lambda_{i+0,5,j}}{h_i} \left(\frac{T_{i+1,j} - T_{i,j}}{h_i + h_{i+1}} \right) + \frac{2\lambda_{i-0,5,j}}{h_i} \left(\frac{T_{i-1,j} - T_{i,j}}{h_i + h_{i-1}} \right) \quad (3.9)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right)_{i,j} = \frac{2\lambda_{i,j+0,5}}{h_j} \left(\frac{T_{i,j+1} - T_{i,j}}{h_j + h_{j+1}} \right) + \frac{2\lambda_{i,j-0,5}}{h_j} \left(\frac{T_{i,j-1} - T_{i,j}}{h_j + h_{j-1}} \right) \quad (3.10)$$

Коэффициенты теплопроводности $\lambda_{i\pm 0,5,j}$; $\lambda_{i,j\pm 0,5}$ являются средними между соответствующими номерами центров ячеек. Возможны их следующие аппроксимации [131-132]:

$$\begin{aligned} \text{а) } \lambda_{i+0,5} &= \frac{\lambda_i + \lambda_{i+1}}{2}; \lambda_{i-0,5} = \frac{\lambda_i + \lambda_{i-1}}{2} \\ \text{б) } \lambda_{i+0,5} &= \sqrt{\lambda_i \cdot \lambda_{i+1}}; \lambda_{i-0,5} = \sqrt{\lambda_i \cdot \lambda_{i-1}} \\ \text{в) } \frac{2}{\lambda_{i+0,5}} &= \frac{1}{\lambda_i} + \frac{1}{\lambda_{i+1}} = \frac{\lambda_i + \lambda_{i+1}}{\lambda_i \cdot \lambda_{i+1}}; \lambda_{i-0,5} = \frac{2\lambda_i \cdot \lambda_{i-1}}{\lambda_i + \lambda_{i-1}} \end{aligned} \quad (3.11)$$

При линейной зависимости λ от координаты точное значение дает аппроксимация а).

Рассмотрим постоянное в пределах ячейки, но ступенчатое изменение λ на границе ячейки i, j (рис.3.3).

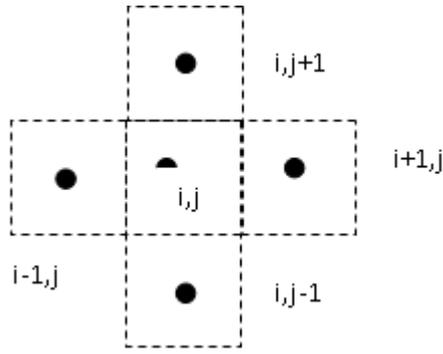


Рисунок 3.3 – Ячейки расчетной области

Поток справа:
$$\frac{\lambda_{i+1}(T_{i+1,0} - T_{i+0,5})}{h/2} = \frac{\lambda_i(T_{i+0,5} - T_i)}{h/2}. \quad \text{Отсюда}$$

$T_{i+0,5} = \frac{\lambda_{i+1}T_{i+1} + \lambda_iT_i}{\lambda_{i+1} + \lambda_i}$. С другой стороны, по (3.9) этот поток равен

$\frac{\lambda_{i+0,5}(T_{i+1} - T_i)}{h}$. Тогда:
$$\frac{\lambda_{i+0,5}(T_{i+1} - T_i)}{h} = \frac{\lambda_{i+1}}{h/2} \left(T_{i+1} - \frac{\lambda_{i+1}T_{i+1} + \lambda_iT_i}{\lambda_{i+1} + \lambda_i} \right), \quad \text{откуда}$$

$\lambda_{i+0,5} = \frac{2\lambda_i\lambda_{i+1}}{\lambda_i + \lambda_{i+1}}$, т.е. точное значение дает аппроксимация в). Аппроксимация

б) дает среднегеометрическое значение аппроксимаций а) и в) $\lambda_{\sigma} = \sqrt{\lambda_a \cdot \lambda_b}$.

При малом изменении λ на одной ячейке все три аппроксимации дают близкий результат. Ввиду сложной и меняющейся во времени границе областей «1», «2» с большим скачком теплопроводности можно принять аппроксимацию б) так и в) для всей сложной области.

Производная по времени имеет вид:

$$\frac{\partial T_{i,j}}{\partial t} \rightarrow \frac{T_{i,j}^{n+1} - T_{i,j}^n}{\tau} \text{ – в двухслойной схеме.}$$

$$\frac{\partial T_{i,j}}{\partial t} \rightarrow \frac{T_{i,j}^{n+1} - T_{i,j}^{n-1}}{2\tau} \text{ – в трехслойной схеме.}$$

Главный вопрос, определяющий устойчивость, точность и число арифметических операций есть: в какие моменты времени («n» или «n+1») брать дискретные производные по координате.

Уравнение Пуассона для потенциала, как и стационарное уравнение теплопроводности не имеют производной по времени, но ее искусственно вводят в широко используемые итерационные методы. Причем часто итерационные методы аналогичны методам решения нестационарных уравнений. Так явно- неявный итерационный метод переменных направлений совпадает с методом дробных шагов решения нестационарных уравнений. Явный итерационный метод совпадает с явным методом решения нестационарных уравнений и имеет те же условия устойчивости $\tau < h^2/4$. Это условие существенно ограничивает скорость счета явных методов и практически неприменимо в сложных вычислительных задачах. Кроме того, нелинейность уравнений и скачки параметров дополнительно снижают допустимое значение « τ ». При переходе к неявным методам и явно-неявным методам переменных направлений ограничение на шаг во времени « τ » ослабляется, но при этом появляется дополнительное применение прогонок на каждом временном шаге.

3.3 Разработка методики ускоренного (экономического) численного решения уравнения теплопроводности

Рассмотрим возможность избежать прогонки без ограничения длительности временного шага.

Рассмотрим однородное уравнение теплопроводности:

$$\frac{\partial U}{\partial t'} = \frac{\partial^2 U}{\partial x'^2} + f, \quad (3.12)$$

где $U = \frac{T}{T_0}$; $t' = \frac{\lambda t}{c_v l^2}$; $x' = \frac{x}{l}$ – безразмерные переменные, $0 \leq x' \leq 1$.

Двухслойной дискретной аппроксимацией уравнения (3.12) с параметром неявности $\delta = 0,5$ является схема Кранка-Никольсона [130].

$$\frac{U_m^{n+1} - U_m^n}{\tau} = \frac{1}{2h^2} (U_{m-1}^{n+1} - 2U_m^{n+1} + U_{m+1}^{n+1}) + \frac{1}{2h^2} (U_{m-1}^n - 2U_m^n + U_{m+1}^n) + f^{n+0,5} \quad (3.13)$$

Схема (3.13) является абсолютно устойчивой при любых « τ » и « h » и имеет второй порядок аппроксимации $O(\tau^2 + h^2)$.

Система уравнений (3.13) для внутренних точек области существования вследствие неявности уравнений решается методом одномерной прогонки. Можно исключить прогонку, применив расщепление оператора правой части $L=L_1+L_2$ с поочередным решением (3.13) с каждым оператором L_1 и L_2 на интервале τ (метод дробных шагов [134-135]).

Примем следующий (смешанный) вид составляющих операторов:

$$L_1 U = \frac{1}{2h^2} (U_{m-1}^{n+1} - U_m^{n+1} - U_m^n + U_{m+1}^n) \quad (3.14)$$

$$L_2 U = \frac{1}{2h^2} (U_{m-1}^n - U_m^n - U_m^{n+1} + U_{m+1}^{n+1}) \quad (3.15)$$

Уравнение (3.13) расщепляется на два уравнения:

$$\frac{U_m^{n+0,5} - U_m^n}{\tau} = \frac{U_{m-1}^{n+0,5} - U_m^{n+0,5} - U_m^n + U_{m+1}^n}{2h^2} + \frac{1}{2} f_m^{n+0,25} \quad (3.16)$$

$$\frac{U_m^{n+1} - U_m^{n+0,5}}{\tau} = \frac{U_{m-1}^{n+0,5} - U_m^{n+0,5} - U_m^{n+1} + U_{m+1}^{n+1}}{2h^2} + \frac{1}{2} f_m^{n+0,75} \quad (3.17)$$

Каждое уравнение (3.16), (3.17) может решаться явным образом при построчном переборе узлов, начиная с левой границы для уравнения (3.16) и с правой границы для уравнения (3.17). Система уравнений (3.16), (3.17) предложена в [133] без вывода расщеплением уравнения (3.13) и названа «перемежающим методом». Показана ее абсолютная устойчивость, но ее аппроксимация при $\tau > 2h^2$ не исследована, и в этом случае дается предпочтение взятию среднеарифметического при двукратном прохождении по одному временному слою сначала на (3.16), потом на (3.17).

Оценим точность суммарного приближения (3.16, 3.17). Сложим и перегруппируем эти уравнения:

$$\begin{aligned} \frac{U_m^{n+1} - U_m^n}{\tau} &= \frac{U_{m-1}^n - 2U_m^n + U_{m+1}^n}{2h^2} + \frac{U_{m-1}^{n+0,5} - U_{m-1}^n + U_m^n - U_m^{n+0,5}}{2h^2} + \frac{U_{m-1}^{n+1} - 2U_m^{n+1} + U_{m+1}^{n+1}}{2h^2} + \\ &+ \frac{U_{m-1}^{n+0,5} - U_m^{n+0,5} + U_m^{n+1} - U_{m-1}^{n+1}}{2h^2} + \frac{f_m^{n+0,25} + f_m^{n+0,75}}{2} \end{aligned} \quad (3.16)$$

Заменим конечные разности соответствующими производными

$$\begin{aligned} \frac{\partial U}{\partial t} \Big|_m^{n+0,5} + 0(\tau^2) &= \frac{1}{2} \frac{\partial^2 U}{\partial \chi^2} \Big|_m^n + 0(h^2) + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 U}{\partial \chi^2} \Big|_m^{n+1} + 0(h^2) - \frac{\tau}{4h} \frac{\partial^2 U}{\partial t \partial \chi} \Big|_{m-0,5}^{n+0,25} - 0\left(\frac{\tau^3}{h}\right) + \\ &+ \frac{\tau}{4h} \frac{\partial^2 U}{\partial t \partial \chi} \Big|_{m-0,5}^{n+0,75} + 0\left(\frac{\tau^3}{h}\right) + f^{n+0,5} + 0(\tau^2) \end{aligned} \quad (3.17)$$

Аппроксимация (3.16), (3.17) отличается от аппроксимации (3.13) только разностью смешанных производных, что добавляет погрешность $\frac{\tau^2}{8h} \frac{\partial^3 U}{\partial t^2 \partial \chi}$.

Каждое уравнение (3.16), (3.17) при их удвоении также аппроксимируют уравнение (3.12), но с большой погрешностью $\frac{\tau^2}{4h} \frac{\partial^2 U}{\partial t \partial \chi}$. Это и будет погрешность применения итерационного метода Зейделя к нестационарному уравнению теплопроводности.

Для оценки устойчивости метода применим спектральный признак устойчивости, подставляя в (3.16), (3.17) $U_m^n = \lambda^n e^{im\varphi}$

$$\frac{\lambda_1^n e^{im\varphi} (\lambda_1^{1/2} - 1)}{\tau} = \lambda_1^n e^{im\varphi} \frac{(\lambda_1^{1/2} e^{-i\varphi} - \lambda_1^{1/2} - 1 + e^{i\varphi})}{2h^2} \quad (3.18)$$

$$\lambda_1^{1/2} = \frac{1 - \frac{\tau}{2h^2} (1 - e^{i\varphi})}{1 + \frac{\tau}{2h^2} (1 - e^{-i\varphi})} = \frac{1 - \frac{\tau}{2h^2} (1 - \cos \varphi) + \frac{i\tau}{2h^2} \sin \varphi}{1 + \frac{\tau}{2h^2} (1 - \cos \varphi) + \frac{i\tau}{2h^2} \sin \varphi} \quad (3.19)$$

Так как $(1 - \cos \varphi) \geq 0$ условие $|\lambda_1| \leq 1$ выполняется при любых τ .

Аналогично для λ_2 получим

$$\lambda_2^{1/2} = \frac{1 - \frac{\tau}{2h^2}(1 - e^{-i\varphi})}{1 + \frac{\tau}{2h^2}(1 - e^{i\varphi})} = \frac{1 - \frac{\tau}{2h^2}(1 - \cos\varphi) - \frac{i\tau}{2h^2}\sin\varphi}{1 + \frac{\tau}{2h^2}(1 - \cos\varphi) - \frac{i\tau}{2h^2}\sin\varphi} \quad (3.20)$$

Поочередное применение уравнений (3.16, 3.17) приводит к умножению параметров λ , $\lambda = \lambda_1\lambda_2$; $|\lambda| \leq 1$ при любых τ . Таким образом, схема (3.16, 3.17) является абсолютно устойчивой. Каждое из уравнений (3.16), (3.17) также обеспечивает абсолютную устойчивость счета, но имеет худшую аппроксимацию.

Применим данный метод для двумерного уравнения теплопроводности:

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \frac{\partial^2 U}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial y^2} + f \quad (3.21)$$

Используя схему Кранка–Николясона с расщеплением по каждой координате, получаем:

$$\frac{U_{m,k}^{n+0,5} - U_{m,k}^n}{\tau} = \frac{U_{m-1,k}^{n+0,5} - U_{m,k}^{n+0,5} - U_{m,k}^n + U_{m+1,k}^n}{2h_1^2} + \frac{U_{m,k-1}^{n+0,5} - U_{m,k}^{n+0,5} - U_{m,k}^n + U_{m,k+1}^n}{2h_2^2} + \frac{1}{2}f_{m,k}^{n+0,25} \quad (3.22)$$

$$\frac{U_{m,k}^{n+1} - U_{m,k}^{n+0,5}}{\tau} = \frac{U_{m-1,k}^{n+0,5} - U_{m,k}^{n+0,5} - U_{m,k}^{n+1} + U_{m+1,k}^{n+1}}{2h_1^2} + \frac{U_{m,k-1}^{n+0,5} - U_{m,k}^{n+0,5} - U_{m,k}^{n+1} + U_{m,k+1}^{n+1}}{2h_2^2} + \frac{1}{2}f_{m,k}^{n+0,75} \quad (3.23)$$

Или перегруппировав члены, будем иметь:

$$U_{m,k}^{n+0,5} \left(1 + \frac{\tau}{h^2}\right) = U_{m,k}^n \left(1 - \frac{\tau}{h^2}\right) + \frac{\tau}{2h^2} \left(U_{m-1,k}^{n+0,5} + U_{m+1,k}^n + U_{m,k-1}^{n+0,5} + U_{m,k+1}^n \right) + \frac{\tau}{2} f_{m,k}^{n+0,25} \quad (3.24)$$

$$U_{m,k}^{n+1} \left(1 + \frac{\tau}{h^2}\right) = U_{m,k}^{n+0,5} \left(1 - \frac{\tau}{h^2}\right) + \frac{\tau}{2h^2} \left(U_{m-1,k}^{n+0,5} + U_{m+1,k}^{n+1} + U_{m,k-1}^{n+0,5} + U_{m,k+1}^{n+1} \right) + \frac{\tau}{2} f_{m,k}^{n+0,75} \quad (3.25)$$

Решение системы уравнений (3.24) на прямоугольной сетке осуществляется явным образом аналогично методу Зейделя построчно от левого нижнего угла до верхнего правого угла. Затем решается система уравнений (3.25) в обратном направлении.

Данный метод можно применять для решения стационарных уравнений

$$\frac{\partial^2 U}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial y^2} + f = 0 \text{ итерационным способом.}$$

Принимая полушаг $\tau/2$ самостоятельным и полагая $\frac{\tau}{2} = \frac{h^2}{2}$ из (3.24)

получаем метод Зейделя.

$$U_{m,k}^{n+1} = \frac{1}{4} \left(U_{m-1,k}^{n+1} + U_{m+1,k}^n + U_{m,k-1}^{n+1} + U_{m,k+1}^n \right) + \frac{h^2}{4} f^{n+0,5} \quad (3.26)$$

Однако использование (3.24) позволяет увеличение τ , а совместное использование (3.24), (3.25) улучшает аппроксимацию. Некоторое ускорение метода Зейделя дает метод верхней релаксации [130].

$$U_{m,k}^{n+1} = \frac{\omega}{4} \left(U_{m-1,k}^{n+1} + U_{m+1,k}^n + U_{m,k-1}^{n+1} + U_{m,k+1}^n \right) - (\omega - 1) U_{m,k}^n + \frac{\omega h^2}{4} f_{m,k}^{n+0,5} \quad (3.27)$$

Здесь параметр релаксации ω для обеспечения устойчивости не может быть более двух. Другие ускоренные методы, например метод переменных направлений, требует проведение прогонки на каждом временном шаге.

В приложениях 3 и 4 проведено тестирование явно-неявного двустороннего (перемежающего) метода решения нестационарного уравнения теплопроводности и стационарного уравнения Пуассона совместно с другими ускоренными методами. Показана эффективность перемежающего метода при временном шаге $\tau = (0,1 \div 0,3)h$.

Используем перемежающий метод для записи системы (3.2÷3.4) в дискретном виде. Аппроксимацию граничных коэффициентов $\lambda_{i\pm 0,5}$ примем для упрощения по типу (3.11б) $\lambda_{i\pm 0,5} = \sqrt{\lambda_i \cdot \lambda_{i\pm 1}}$. Данная аппроксимация сохраняет свойства аппроксимации (3.11в) при скачкообразном изменении « λ » на границе и при малом изменении « T » на шаге « h » практически от нее не отличается.

Тогда уравнение (3.2) станет следующим:

$$\begin{aligned} c\gamma_{i,j} \frac{T_{i,j}^{k+1} - T_{i,j}^k}{\tau} = & \sqrt{\lambda_{i,j} \cdot \lambda_{i+1,j}} \cdot \frac{2(T_{i+1,j}^k - T_{i,j}^k)}{h_i(h_i + h_{i+1})} - \sqrt{\lambda_{i,j} \cdot \lambda_{i-1,j}} \cdot \frac{2(T_{i,j}^{k+1} - T_{i-1,j}^{k+1})}{h_i(h_i + h_{i-1})} + \\ & + \frac{\lambda_{i,j} T_{i+1,j}^k - \lambda_{i,j} T_{i-1,j}^{k+1}}{2r_i \cdot h_i} + \sqrt{\lambda_{i,j} \cdot \lambda_{i,j+1}} \cdot \frac{2(T_{i,j+1}^k - T_{i,j}^k)}{h_j(h_j + h_{j+1})} - \sqrt{\lambda_{i,j} \cdot \lambda_{i,j-1}} \cdot \frac{2(T_{i,j}^{k+1} - T_{i,j-1}^{k+1})}{h_j(h_j + h_{j-1})} + Q_{i,j}^{k+0,5} \end{aligned} \quad (3.28)$$

Перенося все $T_{i,j}^{k+1}$ в левую часть получим:

$$\begin{aligned}
T_{i,j}^{k+1} = & \left\{ T_{i,j}^k \left[1 - \frac{2\tau\sqrt{\lambda_{i,j}}}{c\gamma_{i,j}} \left(\frac{\sqrt{\lambda_{i+1,j}}}{h_i(h_i + h_{i+1})} + \frac{\sqrt{\lambda_{i,j}}}{h_j(h_j + h_{j+1})} \right) \right] + \frac{\tau}{c\gamma_{i,j}} \left[T_{i+1,j}^k \sqrt{\lambda_{i,j}} \cdot \right. \right. \\
& \cdot \left(\frac{2\sqrt{\lambda_{i+1,j}}}{h_i(h_i + h_{i+1})} + \frac{\sqrt{\lambda_{i,j}}}{2h_i \cdot r_i} \right) + T_{i-1,j}^{k+1} \sqrt{\lambda_{i,j}} \left(\frac{2\sqrt{\lambda_{i-1,j}}}{h_i(h_i + h_{i-1})} - \frac{\sqrt{\lambda_{i,j}}}{2h_i r_i} \right) + \frac{T_{i,j+1}^k \cdot 2\sqrt{\lambda_{i,j}\lambda_{i,j+1}}}{h_j(h_j + h_{j+1})} + \\
& \left. \left. + \frac{T_{i,j-1}^{k+1} \cdot 2\sqrt{\lambda_{i,j}\lambda_{i,j-1}}}{h_j(h_j + h_{j-1})} \right] + \frac{\tau}{c\gamma_{i,j}} \cdot Q_{i,j}^{k+0,5} \right\} / \left[1 + \frac{2\tau\sqrt{\lambda_{i,j}}}{c\gamma_{i,j}} \left(\frac{\sqrt{\lambda_{i-1,j}}}{h_i(h_i + h_{i-1})} + \frac{\sqrt{\lambda_{i,j-1}}}{h_j(h_j + h_{j-1})} \right) \right]
\end{aligned} \tag{3.29}$$

$$\text{Здесь } r_i = h \left[\frac{m^i - 1}{m - 1} - \frac{m^i - 1}{2} \right] = h \cdot \frac{m^i + m^{i-1} - 2}{2(m - 1)}.$$

Производные в правой части (3.28) взяты согласно ускоренному явно- неявному методу при проходе счетной области слева направо и снизу вверх. При обратном проходе на следующем временном шаге справа налево и сверху вниз значки « k » и « $k+1$ » в правой части (3.28) меняются местами. На каждом проходе выполняется две итерации. В первой итерации все коэффициенты $c\gamma$, λ , Q берутся на известной температуре, т.е. а момент « k » и определяется предварительное значение температур в « $k+1$ » момент. Затем нужные значения коэффициентов в « $k+1$ » момент уточняются и снова определяются уточненные значения температур в « $k+1$ » момент.

Перейдем к дискретизации уравнения (3.3). Здесь аппроксимацию проводимости на границе ячеек также лучше всего проводить по типу (3.11б), чтобы избежать деления на ноль на границе области «2» (NiO) с близкой к нулю проводимостью.

$$\sigma_{i\pm 0,5} = \sqrt{\sigma_i \cdot \sigma_{i\pm 1}} ; \sigma_{j\pm 0,5} = \sqrt{\sigma_j \cdot \sigma_{j\pm 1}} . \tag{3.30}$$

При этом сохраняется нулевая плотность тока на границе с областью «2». В результате аналогично уравнениям (3.28), (3.29) получим:

$$\begin{aligned} \frac{U_{i,j}^{k+1} - U_{i,j}^k}{\tau} &= \sqrt{\sigma_{i,j} \cdot \sigma_{i+1,j}} \cdot \frac{2(U_{i+1,j}^k - U_{i,j}^k)}{h_i(h_i + h_{i+1})} - \sqrt{\sigma_{i,j} \cdot \sigma_{i-1,j}} \cdot \frac{2(U_{i,j}^{k+1} - U_{i-1,j}^{k+1})}{h_i(h_i + h_{i-1})} + \\ &+ \frac{\sigma_{i,j} T_{i+1,j}^k - \sigma_{i,j} T_{i-1,j}^{k+1}}{2r_i \cdot h_i} + \sqrt{\sigma_{i,j} \cdot \sigma_{i,j+1}} \cdot \frac{2(U_{i,j+1}^k - U_{i,j}^k)}{h_j(h_j + h_{j+1})} - \sqrt{\sigma_{i,j} \cdot \sigma_{i,j-1}} \cdot \frac{2(U_{i,j}^{k+1} - U_{i,j-1}^{k+1})}{h_j(h_j + h_{j-1})} \end{aligned} \quad (3.31)$$

$$\begin{aligned} U_{i,j}^{k+1} &= \left\{ U_{i,j}^k \left[1 - 2\tau \sqrt{\sigma_{i,j}} \left(\frac{\sqrt{\sigma_{i+1,j}}}{h_i(h_i + h_{i+1})} + \frac{\sqrt{\sigma_{i,j+1}}}{h_j(h_j + h_{j+1})} \right) \right] \right\} + \tau \left[U_{i+1,j}^k \sqrt{\sigma_{i,j}} \cdot \right. \\ &\cdot \left(\frac{2\sqrt{\sigma_{i+1,j}}}{h_i(h_i + h_{i+1})} + \frac{\sqrt{\sigma_{i,j}}}{2h_i \cdot r_i} \right) + U_{i-1,j}^{k+1} \sqrt{\sigma_{i,j}} \left(\frac{2\sqrt{\sigma_{i-1,j}}}{h_i(h_i + h_{i-1})} - \frac{\sqrt{\sigma_{i,j}}}{2h_i r_i} \right) + \frac{U_{i,j+1}^k \cdot 2\sqrt{\sigma_{i,j} \sigma_{i,j+1}}}{h_j(h_j + h_{j+1})} + \right. \\ &\left. + \frac{U_{i,j-1}^{k+1} \cdot 2\sqrt{\sigma_{i,j} \sigma_{i,j-1}}}{h_j(h_j + h_{j-1})} \right] \left/ \left[1 + 2\tau \sqrt{\sigma_{i,j}} \left(\frac{\sqrt{\sigma_{i-1,j}}}{h_i(h_i + h_{i-1})} + \frac{\sqrt{\sigma_{i,j-1}}}{h_j(h_j + h_{j-1})} \right) \right] \right\} \end{aligned} \quad (3.32)$$

Для плотности тока и объемного выделения тепла получим:

$$j_{ni,j} = \sigma_{i,j} \frac{(U_{i+1,j} - U_{i-1,j})}{2h_i}; \quad j_{zi,j} = \sigma_{i,j} \frac{(U_{i,j+1} - U_{i,j-1})}{2h_j}; \quad Q_{i,j} = \frac{(j_r^2 + j_z^2)}{\sigma_{i,j}} \quad (3.33)$$

Полный ток определится выражением:

$$I = 2\pi r_i h_i \sum_{i=1}^M j_{zi,1}. \quad (3.34)$$

Для дискретного вида уравнения диффузии (3.4) будем иметь:

$$\begin{aligned} \frac{n_{i,j}^{k+1} - n_{i,j}^k}{\tau} &= \sqrt{D_{i,j} \cdot D_{i+1,j}} \cdot \frac{2(n_{i+1,j}^k - n_{i,j}^k)}{h_i(h_i + h_{i+1})} - \sqrt{D_{i,j} \cdot D_{i-1,j}} \cdot \frac{2(n_{i,j}^{k+1} - n_{i-1,j}^{k+1})}{h_i(h_i + h_{i-1})} + \\ &+ \frac{D_{i,j} n_{i+1,j}^k - D_{i,j} n_{i-1,j}^{k+1}}{2r_i \cdot h_i} + \sqrt{D_{i,j} \cdot D_{i,j+1}} \cdot \frac{2(n_{i,j+1}^k - n_{i,j}^k)}{h_j(h_j + h_{j+1})} - \sqrt{D_{i,j} \cdot D_{i,j-1}} \cdot \frac{2(n_{i,j}^{k+1} - n_{i,j-1}^{k+1})}{h_j(h_j + h_{j-1})} \end{aligned} \quad (3.35)$$

$$n_{i,j}^{k+1} = \left\{ n_{i,j}^k \left[1 - 2\tau \sqrt{D_{i,j}} \left(\frac{\sqrt{D_{i+1,j}}}{h_i(h_i + h_{i+1})} + \frac{\sqrt{D_{i,j+1}}}{h_j(h_j + h_{j+1})} \right) \right] \right\} + \tau \left[n_{i+1,j}^k \sqrt{D_{i,j}} \cdot \right.$$

$$\left. \left(\frac{2\sqrt{D_{i+1,j}}}{h_i(h_i+h_{i+1})} + \frac{\sqrt{D_{i,j}}}{2h_i \cdot r_i} \right) + n_{i-1,j}^{k+1} \sqrt{D_{i,j}} \left(\frac{2\sqrt{D_{i-1,j}}}{h_i(h_i+h_{i-1})} - \frac{\sqrt{D_{i,j}}}{2h_i r_i} \right) + \frac{n_{i,j+1}^k \cdot 2\sqrt{D_{i,j}D_{i,j+1}}}{h_j(h_j+h_{j+1})} + \frac{n_{i,j-1}^{k+1} \cdot 2\sqrt{D_{i,j}D_{i,j-1}}}{h_j(h_j+h_{j-1})} \right\} \left/ \left[1 + 2\tau \sqrt{D_{i,j}} \left(\frac{\sqrt{D_{i-1,j}}}{h_i(h_i+h_{i-1})} + \frac{\sqrt{D_{i,j-1}}}{h_j(h_j+h_{j-1})} \right) \right] \right. \quad (3.36)$$

3.4 Значения параметров составляющих структуру. Безразмерный вид параметров и переменных. Компьютерные переменные

На основании данных литературного обзора по параметрам составляющих структуры для проведения численных расчетов приняты их следующие значения (таблица 3.2).

Таблица 3.2 – Значения параметров составляющих структуры

материал/ параметры	$c\gamma \cdot 10^6,$ Дж/(м ³ ·град)	$\lambda,$ Вт/(м·град)	$\sigma,$ (Ом·м) ⁻¹
проводящий канал	5,4	24	$0,91 \cdot 10^6 \cdot [1 + 0,51 \cdot (T/T_0 - 1)]^{-1}$
NiO	$4,6 + 0,3 \cdot (T/T_0 - 1)$	$16 \cdot \sqrt{T_0/T}$	$10^{-2} \cdot \exp(-3600/T)$
электрод Pt	$2,8 + 0,14 \cdot (T/T_0 - 1)$	$71 + 2,1 \cdot (T/T_0 - 1)$	$10^7 \cdot T_0/T$

Для коэффициента диффузии никелевых вакансий в NiO принимаем значение $D = 1 \cdot 10^{-6} \exp\left(-\frac{14200}{T}\right) \frac{m^2}{c}$. Температура плавления никеля $T_{плNi} = 1728$ К, теплота плавления Ni $\Delta H_{плNi} = 2,4 \cdot 10^9$ Дж/м³. Температура плавления NiO $T_{плNiO} = 2230$ К, теплота плавления NiO $\Delta H_{плNiO} = 5 \cdot 10^9$ Дж/м³. Температура плавления платины $T_{плPt} = 2045$ К, теплота плавления платины $\Delta H_{плPt} \approx 2 \cdot 10^9$ Дж/м³.

Абсолютные значения параметров и переменных для численного расчета удобно привести к безразмерному виду. Переход к безразмерным переменным исключает ошибки с размерностями, исключает большие степени значений

переменных, что уменьшает машинное время счета. Значения всех параметров становятся порядка единицы. Кроме того, один и тот же расчет в безразмерных переменных легко пересчитывается на разные конкретные их абсолютные значения.

В качестве базовых значений выбираем тепловые параметры проводящего канала при нормальной температуре, нормальную температуру и толщину пленки NiO.

$$\lambda' = \lambda / \lambda_0, \lambda_0 = \lambda_{\text{кан}} = 24 \text{ Вт/м}\cdot\text{град};$$

$$\sigma' = \sigma / \sigma_0, \sigma_0 = 0,91 \cdot 10^{-6} \text{ 1/Ом}\cdot\text{м}.$$

$$\gamma c = \frac{(\gamma c)'}{(\gamma c)_0}, (\gamma c)_0 = \gamma_k \cdot c_k = 5,4 \cdot 10^6 \text{ Дж/м}^3 \cdot \text{град}.$$

$$r' = r / l; z' = z / l; l = 5 \cdot 10^{-8} \text{ м}.$$

$$T' = T / T_0, T_0 = 300 \text{ К}.$$

$$t' = t / t_0, t_0 = \frac{l^2 (\gamma c)_0}{\lambda_0} = 5,6 \cdot 10^{-10} \text{ с}.$$

$$U' = U / U_0, U_0 = \sqrt{\frac{\lambda_0 T_0}{\sigma_0}} = 0,0889 \text{ В};$$

$$E' = E / E_0, E_0 = \frac{U_0}{l} = 1,78 \cdot 10^6 \frac{\text{В}}{\text{м}}.$$

$$Q' = Q / Q_0, Q_0 = \frac{\lambda_0 T_0}{l^2} = E_0^2 \sigma_0 = 2,88 \cdot 10^{18} \frac{\text{Вт}}{\text{м}^3};$$

$$\Delta H'_{nl} = \frac{\Delta H_{nl}}{Q_0 t_0} = \frac{\Delta H_{nl}}{1,62 \cdot 10^9 \frac{\text{Дж}}{\text{м}^3}}.$$

$$j' = j / j_0; j_0 = \frac{\sigma_0 U_0}{l} = 1,6 \cdot 10^{12} \frac{\text{А}}{\text{м}^2};$$

$$I' = I / I_0; I_0 = l \sigma_0 \varphi_0 = 4 \cdot 10^{-3} \text{ А}.$$

$$C'_{емк} = C_{емк} / C_{емк0} ; C_{емк0} = \frac{l^3 (c\gamma)_0 \sigma_0}{\lambda_0} = 25,4 \cdot 10^{-12} \Phi = \frac{I_0 t_0}{U_0}.$$

$$D' = D / D_0 ; D_0 = \frac{l^2}{t_0} = \frac{\lambda_0}{(c\gamma)_0} = 4,44 \cdot 10^{-6} \frac{м^2}{с}.$$

$n' = n / n_0$; n_0 – начальная концентрация вакансий в NiO равная нехватке концентрации кислорода в канале.

Значения безразмерных параметров приведены в таблице 3.3.

Таблица 3.3 – Значения безразмерных параметров

материал/ параметры	$(c\gamma)'$	λ'	σ'
проводящий канал	1	1	$[1+0,51 \cdot (T'-1)]^{-1}$
NiO	$0,85+0,0555 \cdot (T'-1)$	$0,667 \cdot (T')^{-1/2}$	$\sim 10^{-4} \cdot \exp(-12/T')$
электрод Pt	$0,52+0,026 \cdot (T'-1)$	$2,96+0,0875 \cdot (T'-1)$	$11/T'$

$$T'_{плNi} = 5,76; \Delta H'_{плNi} = 1,48; T'_{плNiO} = 7,43; \Delta H'_{плNiO} = 3,086; T'_{плPt} = 6,82;$$

$$\Delta H'_{плPt} = 1,23; D' = 0,225 \cdot \exp\left(-\frac{47,3}{T'}\right).$$

Для уменьшения числа арифметических операций в (3.29, 3.32, 3.36) введем компьютерные переменные.

$$\tilde{\lambda}_{i,j} = \sqrt{\lambda'_{i,j}} ; \tilde{\sigma}_{i,j} = \sqrt{\sigma'_{i,j}} ; \tilde{Q}_{i,j} = h^2 Q'_{i,j} ; \tilde{D}_{i,j} = \sqrt{D'_{i,j}} ; d = \frac{dt}{h^2} ; f_i = \frac{h_i}{h} ; \beta_i = \frac{r_i}{h}.$$

В программе для упрощения волнистые черты опускаются. В расчетах используются одномерные массивы f_i, β_i и двумерные массивы: $T_{i,j}, C_{i,j}, \lambda_{i,j}, \sigma_{i,j}, U_{i,j}, Q_{i,j}, \alpha_{i,j}, D_{i,j}, n_{i,j}, A_{i,j}$, где $\alpha_{i,j}$ – нахождение теплосодержания в ячейке до плавления при постоянной температуре плавления, $A_{i,j}$ – накопление концентрации никелевых вакансий в граничных ячейках до полного окисления никеля.

4 МОДЕЛИРОВАНИЕ ПЕРЕХОДА В НИЗКООМНОЕ СОСТОЯНИЕ ПРИ ПРОБОЕ СТРУКТУРЫ Pt/NiO/Pt

4.1 Исходные предположения. Постановка задачи

Предполагаемая электрическая схема цепи представлена на рисунке 4.1.

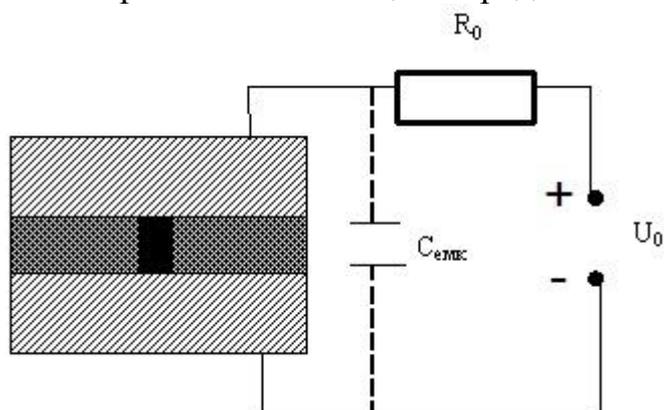


Рисунок 4.1– Электрическая схема цепи

Источник постоянного напряжения подключен к структуре через добавочное сопротивление R_0 . Кроме того, электроды структуры имеют паразитную емкость $C_{\text{емк}}=5,3$ пФ при площади электродов 50×50 мкм² и $C_{\text{емк}}=0,053$ пФ при площади электродов 5×5 мкм².

При повышении напряжения на структуре до значения U_0 происходит пробой пленки NiO в виде тонкого канала радиусом $a = 1 \div 4$ нм. Ток в структуре

$I_k = \frac{U_k}{R_k}$ определяется суммой тока разряда емкости и тока источника:

$$I_k = I_C + \frac{U_0 - U_k}{R_0}, \text{ где } I_C = C \frac{dU_k}{dt}. \quad (4.1)$$

Джоулевая энергия разряда тратится на нагрев и уход тепла теплопроводностью. При превышении температуры на границе канала температуры плавления NiO канал расширяется за счет присоединения и объединения атомов Ni к жидким никелевым фрагментам в канале и ухода кислорода в виде никелевых вакансий.

Ток в разряде увеличивается и затем устанавливается ниже уровня ограничения $I_0 = U_0 / R_0$. При этом устанавливается и размер проводящего канала, т.е. устанавливается низкоомное состояние «ON». Границей токового канала считаем границу расплавления NiO.

Приближенные аналитические оценки показали, что время установления температуры и время разряда электрической емкости составляет менее $1 \cdot 10^{-9}$ сек. В то же время, время диффузии никелевых вакансий в твердом диэлектрике NiO на порядки выше ($10^{-5} \div 10^{-3}$) сек. Таким образом, при рассмотрении пробоя и формирования состояния «ON» диффузией никелевых вакансий в окисле можно пренебречь. Остается два уравнения: для температуры (3.29) и потенциала (3.32) с параметрами, определяемыми таблицей 2.1.

Для безразмерных компьютерных переменных эти уравнения запишутся:

$$T_{i,j} = \left\{ T_{i,j} \left[1 - \frac{d\lambda_{i,j}}{1,005C_{i,j}} \left(\frac{\lambda_{i+1,j}}{f_i^2} + \frac{\lambda_{i,j+1}}{f_j^2} \right) \right] + \frac{d\lambda_{i,j}}{C_{i,j}} \left[T_{i+1,j} \left(\frac{\lambda_{i+1,j}}{1,005f_i^2} + \frac{\lambda_{i,j}}{2f_i b_i} \right) + T_{i-1,j} \left(\frac{\lambda_{i-1,j}}{0,995f_i^2} - \frac{\lambda_{i,j}}{2f_i b_i} \right) + \frac{T_{i,j+1}\lambda_{i,j+1}}{1,005f_j^2} + \frac{T_{i,j-1}\lambda_{i,j-1}}{0,995f_j^2} + \frac{Q_{i,j}}{\lambda_{i,j}} \right] \right\} \cdot \left[1 + \frac{d\lambda_{i,j}}{C_{i,j}} \cdot \left(\frac{\lambda_{i-1,j}}{0,995f_i^2} + \frac{\lambda_{i,j-1}}{0,995f_j^2} \right) \right]^{-1} \quad (4.2)$$

$$U_{i,j} = \left\{ U_{i,j} \left[1 - \frac{d\sigma_{i,j}}{1,005} \left(\frac{\sigma_{i+1,j}}{f_i^2} + \frac{\sigma_{i,j+1}}{f_j^2} \right) \right] + d\sigma_{i,j} \left[U_{i+1,j} \left(\frac{\sigma_{i+1,j}}{1,005f_i^2} + \frac{\sigma_{i,j}}{2f_i b_i} \right) + U_{i-1,j} \left(\frac{\sigma_{i-1,j}}{0,995f_i^2} - \frac{\sigma_{i,j}}{2f_i b_i} \right) + \frac{U_{i,j+1}\sigma_{i,j+1}}{1,005f_j^2} + \frac{U_{i,j-1}\sigma_{i,j-1}}{0,995f_j^2} \right] \right\} \cdot \left[1 + d\sigma_{i,j} \left(\frac{\sigma_{i-1,j}}{0,995f_i^2} + \frac{\sigma_{i,j-1}}{0,995f_j^2} \right) \right]^{-1} \quad (4.3)$$

Здесь опущены штрихи и волнистые линии, обозначающие безразмерные компьютерные переменные.

$$\beta_i = \frac{m^i + m^{i-1} - 2}{2(m-1)}; \quad r_i = h\beta_i; \quad f_i = m^{i-1}; \quad h_i = hf_i;$$

$$Q_{i,j} = \frac{\sigma_{i,j}^2}{4} \left(\frac{(U_{i+1,j} - U_{i-1,j})^2}{f_i^2} + \frac{(U_{i,j+1} - U_{i,j-1})^2}{f_j^2} \right); \quad (4.4)$$

$$(h_i + h_{i+1})/2 = 1,005h_i; \quad d = \tau/h^2; \quad (h_i + h_{i-1})/2 = 0,995h_i.$$

Данные выражения предполагают построчный проход по счетной области слева-направо, снизу-вверх, где переменные с индексом $i-1, j-1$ уже соответствуют новому моменту времени, т.е. исправляются автоматически. На следующем интервале времени проход производится справа-налево, сверху-вниз, где уже новыми будут переменные с индексами $i+1, j+1$.

Это позволяет сохранить устойчивость счета для значений $d = \frac{\tau}{h^2} \gg \frac{1}{4}$. С учетом скачков параметров на границах раздела среднее значение τ принималось несколько меньше экономически оптимального $\tau \approx (0,1 \div 0,2)h$.

В результате отработки программ практически принималось $\tau = 0,02h$, при $h = 0,005$, $\frac{\tau}{h^2} = 4$, что в 16 раз выше принимаемого по методу Зейделя $\frac{\tau}{h^2} = \frac{1}{4}$ при тех же численных затратах на один шаг.

4.2 Алгоритм счета

а) Начальные значения параметров.

Задается начальный шаг по координате $h = \frac{\Delta r}{l} = \frac{\Delta z}{l} = 0,005$, шаг по времени $dt = \frac{\Delta t}{5,6 \cdot 10^{-10} \text{ с}} = 1 \cdot 10^{-4}$, напряжение источника 4,3В, что дает безразмерное напряжение на половине структуры $U_0 = 24,18$.

Дополнительное сопротивление R_0 определяло набор значений токов ограничения $4,3В/RкОм = 0; 1; 4; 15; 60; 80; 100; 200mA$. Тогда относительные значения этих токов равны: $0; 0,25; 1; 3,75; 15; 20; 25; 50$. Начальная температура всех областей структуры принималась $300 K$, т.е. безразмерное значение $T' = 1$. Начальные параметры составляющих структуры принимались согласно таблице 3.3 при $T'=1$. Начальное теплосодержание $\alpha_{i,j}$ в канале принималось $\alpha_{i,j} = \Delta H'_{NiO} = 3,086$, вне канала в области «2» – $\alpha_{i,j} = 0$.

б) Установление начального значения потенциала и объемного выделения тепла.

Начальное распределение потенциала устанавливалось равномерно по половине толщины пленки с общим значением U_0 . Потенциал нижней границы счетной области (середина пленки) принимался равным нулю. Затем за $100 \div 1000$ операций по формуле 4.3 уточнялось значение потенциала в каждой точке счетной области, включая электрод, при значении потенциала на верхней границе электрода, равном U_0 .

На оси и на внешнем радиусе при радиальном градиенте потенциала равном нулю принималось $U_{0,j} = U_{1,j}; U_{M,j} = U_{M-1,j}$.

Далее по (4.4) определялось объемное выделение тепла $Q_{i,j}$ и полный ток в безразмерном компьютерном виде:

$$I_k = \sum_{i=1}^{M-1} \pi h f_i b_i (U_{i,2} - U_{i,0}) \sigma_{i,1}^2 \quad (4.5)$$

в) Сдвиг во времени $t=t+dt$. Вычисление температуры.

Сначала определяется напряжение на емкости и канале за время dt .

$$\Delta U = \frac{dt}{C_{емк}} \left[I_k - I_0 \left(1 - \frac{U_k}{U_0} \right) \right]; U_k = U_k - \Delta U. \quad (4.6)$$

Также пропорционально изменению U_k изменяются потенциалы всех точек $U_{i,j}$. После разряда емкости и установления размеров канала будет выполняться

$$\Delta U = 0; \frac{I_k}{I_0} = 1 - \frac{U_k}{U_0}.$$

Далее уточняется температура за dt по (4.2) сначала по областям «1», «2».

Далее производится проверка плавления оксида.

Если температура в ячейке $T_{i,j}$ больше температуры плавления оксида никеля ($T_{i,j} > T_1$ ($T_1 = T_{\text{плNiO}} = 7,43$)), и теплосодержание в ячейке меньше теплоты оксида никеля ($\alpha_{i,j} < H_1$ ($H_1 = \Delta H'_{\text{плNiO}} = 3,086$)), то: $\alpha_{i,j} = \alpha_{i,j} + C_{i,j}(T_{i,j} - T_1)$,

$$C_{i,j} = \left(1 - \frac{\alpha_{i,j}}{H_1}\right) \cdot (0,85 + 0,0555(T_1 - 1)) + \frac{\alpha_{i,j}}{H_1};$$

$$\lambda_{i,j} = \left(1 - \frac{\alpha_{i,j}}{H_1}\right) \cdot 0,667(T_1)^{-1/2} + \frac{\alpha_{i,j}}{H_1}; \sigma_{i,j} = \frac{\alpha_{i,j}}{H_1} [1 + 0,51(T_1 - 1)]^{-1}; T_{i,j} = T_1.$$

Таким образом, граничная ячейка плавно изменяет свои параметры, температура в ней фиксируется на температуре плавления, а теплосодержание ячейки увеличивается. Когда $\alpha_{i,j}$ достигает H_1 , ячейка полностью переходит в проводящий канал с его параметрами. В остальных ячейках в соответствии с изменением температуры уточняются все параметры.

Далее уточняется температура по (4.2) в области электрода «3». Возможно совместное решение уравнения (4.2) для всех областей структуры («1-3»), и уточнение их параметров в связи с изменением температуры.

Плавление электрода (область «3») учитывалось аналогичным образом $T_{\text{плPt}} = T_3 = 6,82$; $\Delta H'_{\text{Pt}} = H_3 = 1,23$. Однако вследствие высокой теплопроводности плавление платины практически не достигается.

г) Расчет распределения потенциала объемного выделения тепла и тока в структуре. Распределение потенциала при новых значениях параметров вычислялось по (4.3), объемное выделение тепла – по (4.4) и ток в структуре по (4.5).

д) Увеличиваем время на dt и возвращаемся к пункту в), повторяя процесс многократно.

Через заданные промежутки времени производится вывод значений температуры, потенциала и проводимости в выбранных ячейках, а также тока в структуре и падения напряжения на ней.

При большей паразитной емкости $C_{\text{смк}} = 5,3$ пФ и малых токах ограничения источника ток после достижения максимума снижается и затем

устанавливается на меньшем значении. При остывании структуры и таком уменьшении тока учитывалось застывание жидкого никеля в канале при $T_{плNi} = T2 = 5,76$ и выделения теплосодержания $\Delta H'_{Ni} = H2 = 1,48$. Однако это уже не влияло на размер сформированного проводящего канала.

4.3 Результаты вычислений

Результаты расчета практически не зависели от принимаемого начального радиуса канала после пробоя в пределах 1,6 – 3 нм. Однако при начальном радиусе менее 1,6 нм температура не увеличивалась, и канал не расширялся из-за быстрого отвода тепла при больших градиентах температуры.

В качестве примера на рисунках 4.2 – 4.8 приведены распределения температуры и тока в структуре в различные моменты разряда.

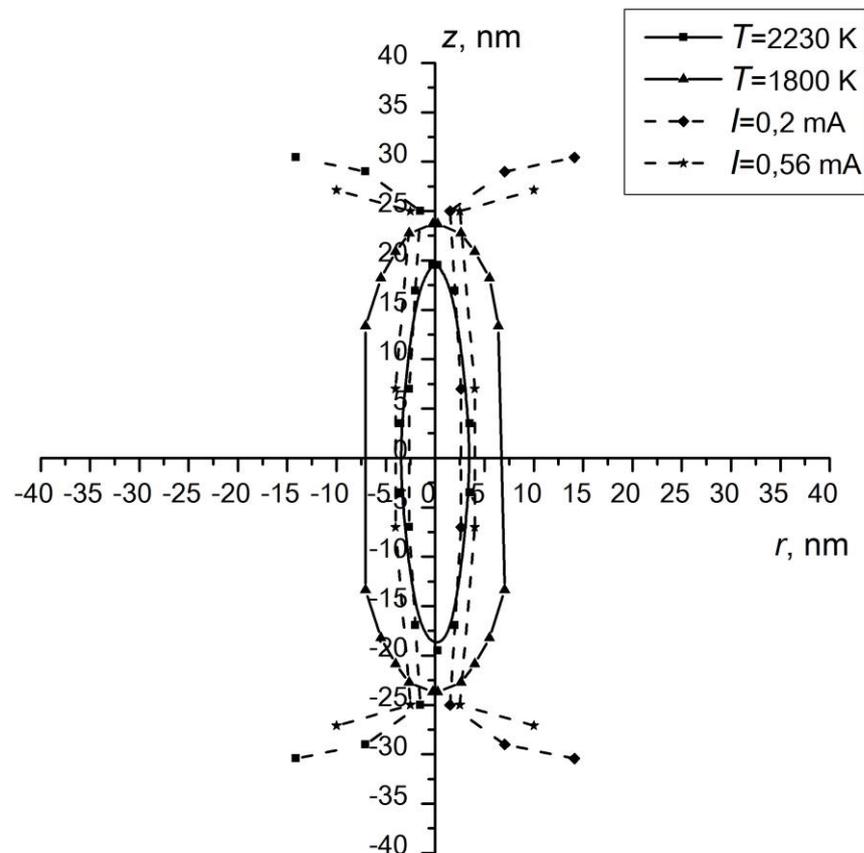


Рисунок 4.2 – Пространственно-временное распределение тока и температуры процесса электроформовки структуры при $I_0=15\text{mA}$, $U_0=4,3\text{В}$, $C=0,053\text{пФ}$ ($t=0,028\text{нс}$)

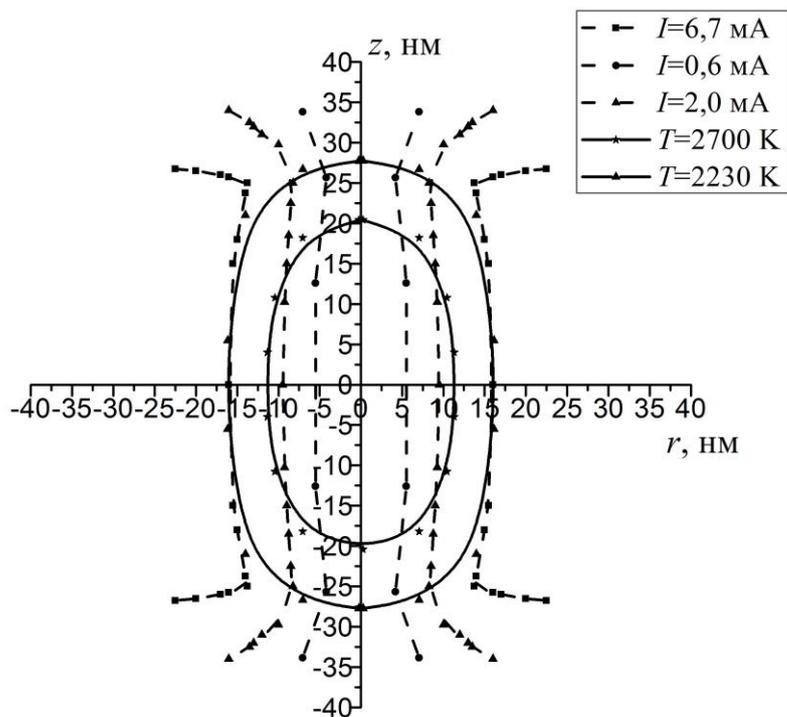


Рисунок 4.3 – Пространственно-временное распределение тока и температуры процесса электроформовки структуры при $I_0=15\text{mA}$, $U_0=4,3\text{В}$, $C=0,053\text{пФ}$ ($t=0,14\text{нс}$)

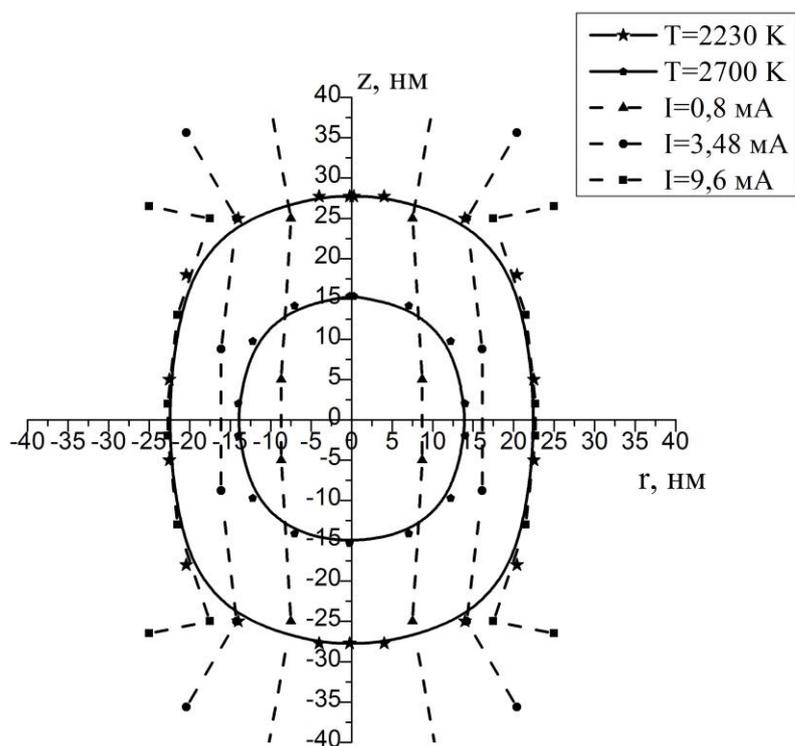


Рисунок 4.4 – Пространственно-временное распределение тока и температуры процесса электроформовки структуры при $I_0=15\text{mA}$, $U_0=4,3\text{В}$, $C=0,053\text{пФ}$ ($t=0,252\text{нс}$)

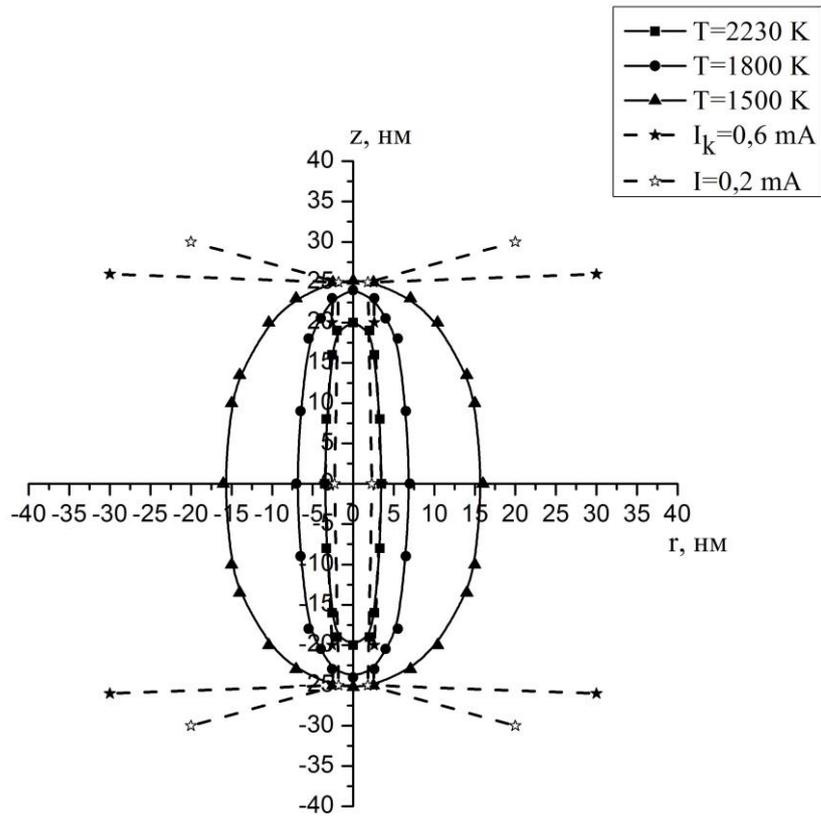


Рисунок 4.5 – Пространственно-временное распределение тока и температуры процесса электроформовки структуры при $I_0=60\text{мА}$, $U_0=4,3\text{В}$, $C=0,053\text{пФ}$ ($t=0,028\text{нс}$)

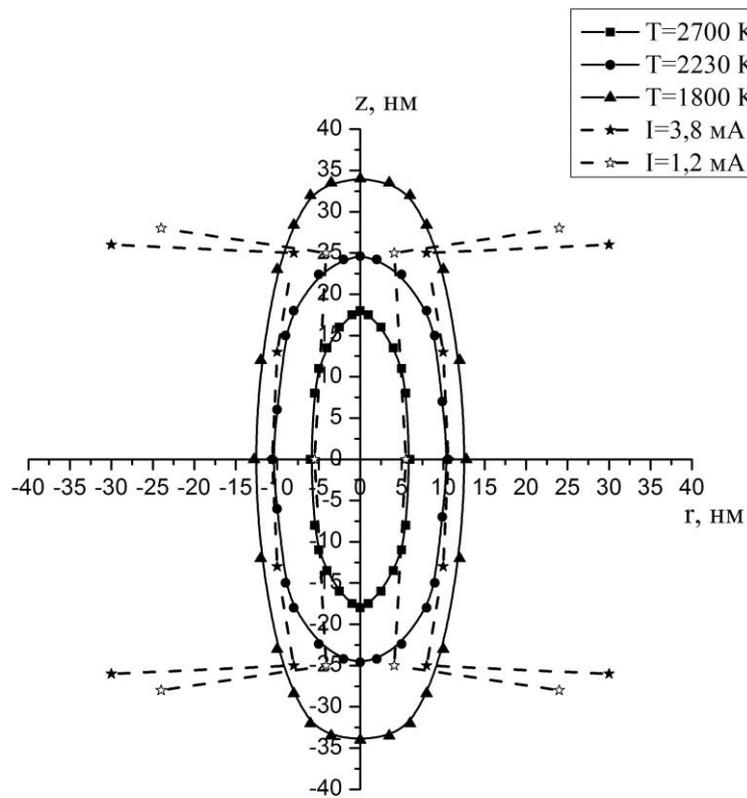


Рисунок 4.6 – Пространственно-временное распределение тока и температуры процесса электроформовки структуры при $I_0=60\text{мА}$, $U_0=4,3\text{В}$, $C=0,053\text{пФ}$ ($t=0,084\text{нс}$)

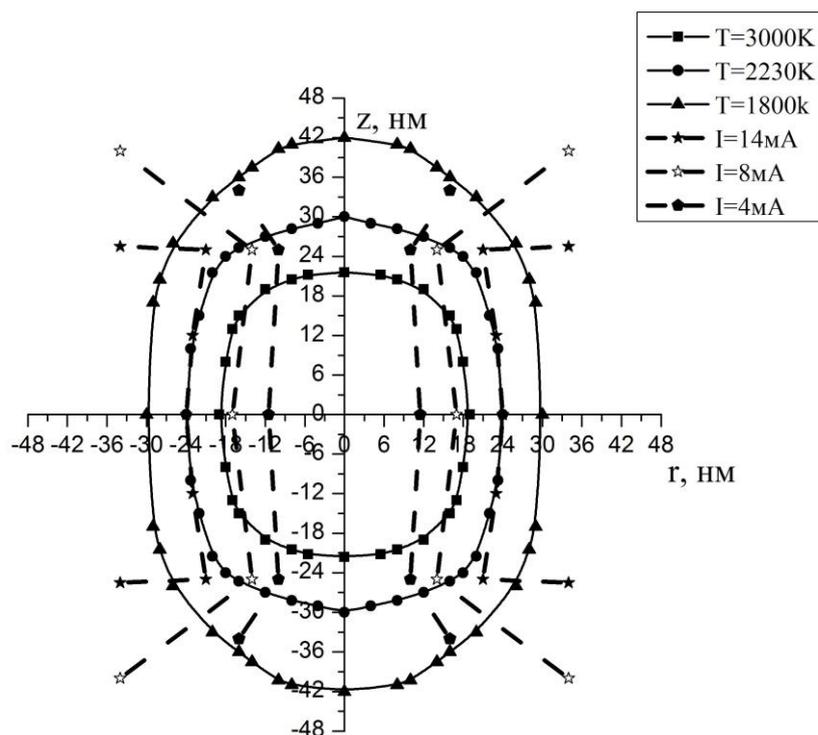


Рисунок 4.7 – Пространственно-временное распределение тока и температуры процесса электроформовки структуры при $I_0=60\text{mA}$, $U_0=4,3\text{В}$, $C=0,053\text{пФ}$ ($t=0,14\text{нс}$)

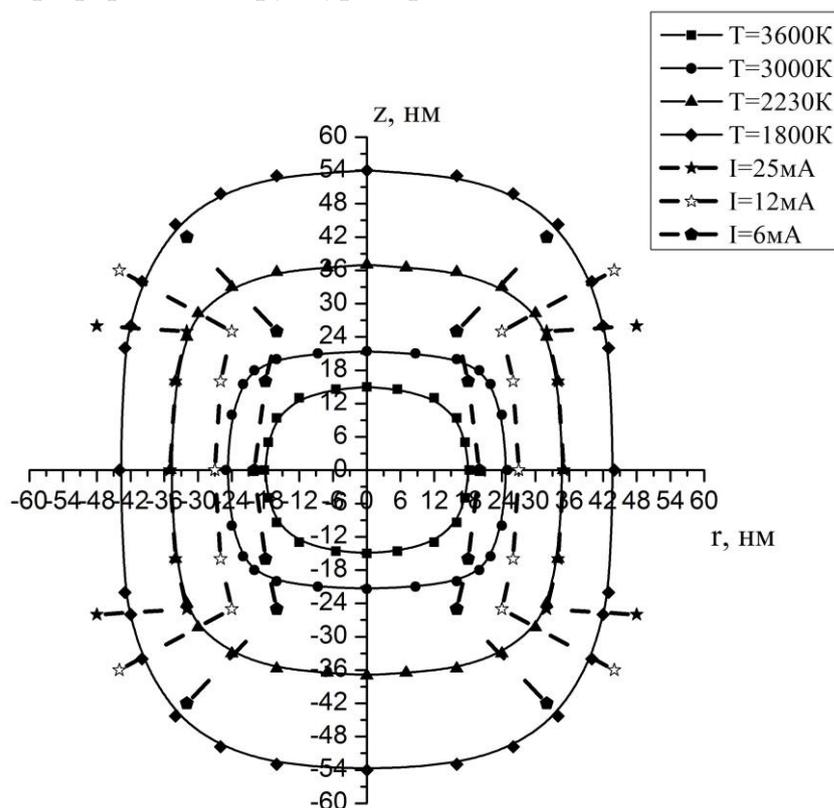


Рисунок 4.8 – Пространственно-временное распределение тока и температуры процесса электроформовки структуры при $I_0=60\text{mA}$, $U_0=4,3\text{В}$, $C=0,053\text{пФ}$ ($t=0,196\text{нс}$)

Как видно из рисунков, температура и ток неоднородны по длине канала, их линии сужаются к электродам, а радиальное распределение устанавливается за $0,2 \div 0,3$ нс.

На рисунках 4.9, 4.10 показаны зависимости от времени наибольшего радиуса канала (при $z=0$) и тока разряда при двух значениях емкости C (0,053 пФ и 5,3 пФ), соответствующим площадям электродов 5×5 мкм² и 50×50 мкм², и различных значениях тока ограничения I_0 .

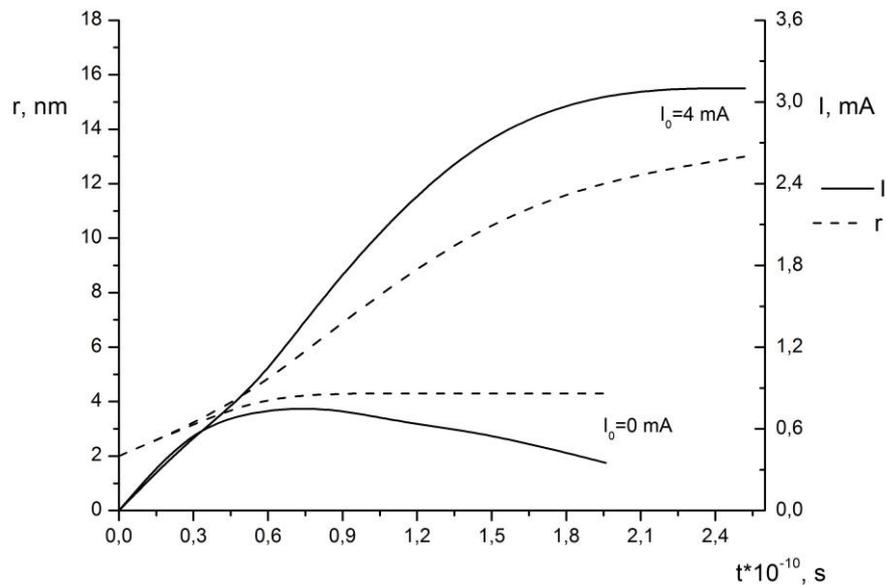


Рисунок 4.9 а) – Кинетика изменения радиуса r (пунктирная кривая) и тока разряда I (сплошная линия) при $C=0,053$ пФ и токах ограничения $I_0=0$ и $I_0=4$ мА

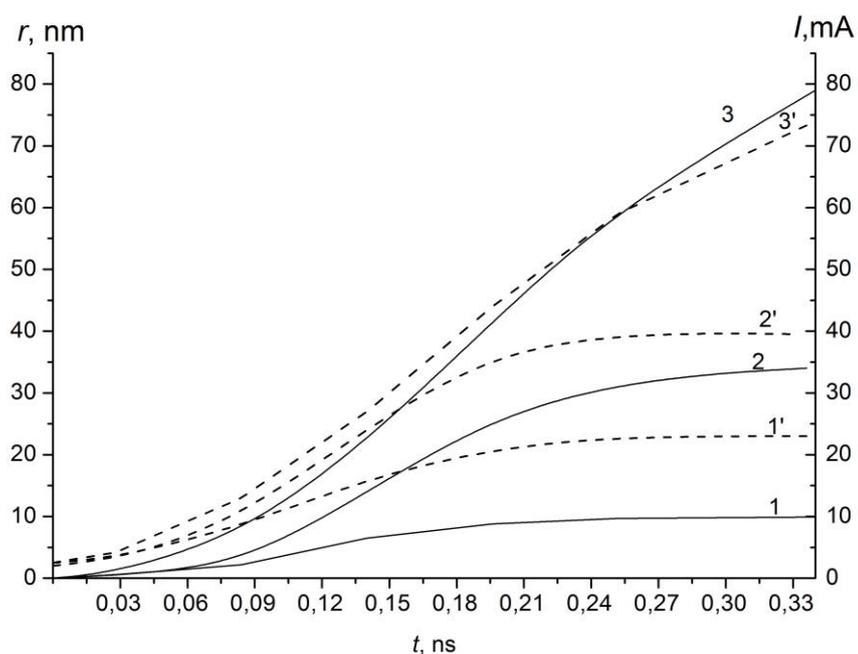


Рисунок 4.9 б) – Кинетика изменения радиуса r (пунктирная кривая) и тока разряда I (сплошная линия) при $C=0,053$ пФ и токах ограничения $I_0=15$ мА(кривые 1 и 1'); $I_0=60$ мА (кривые 2 и 2') и $I_0=200$ мА (кривые 3 и 3')

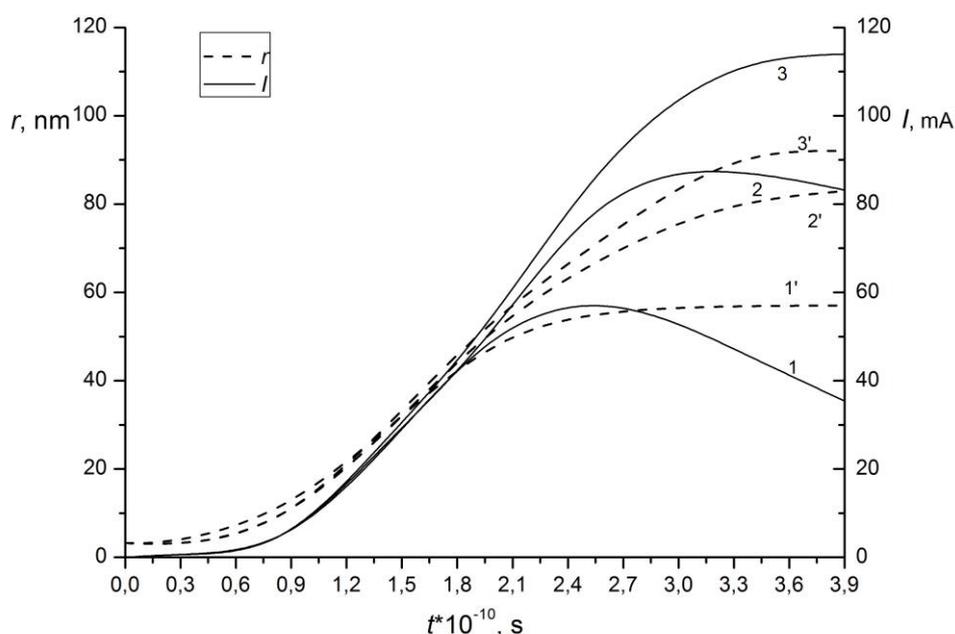


Рисунок 4.10 – Кинетика изменения радиуса r (пунктирная кривая) и тока разряда I (сплошная линия) при $C=5,3$ пФ и токах ограничения $I_0=4$ мА(кривые 1 и 1'); $I_0=80$ мА (кривые 2 и 2') и $I_0=200$ мА (кривые 3 и 3')

Заметно влияние паразитной емкости на максимальный разрядный ток и радиус канала. Так емкость $C = 0,053$ пФ является определяющей в образовании проводящего канала при токах ограничения менее 4 мА, а емкость $C=5,3$ пФ влияет даже при токе ограничения более 100 мА.

Зависимости установившихся радиуса, сопротивления и температуры канала от максимального тока (рис.4.11) имеют монотонный характер и практически совпадают при разных емкостях.

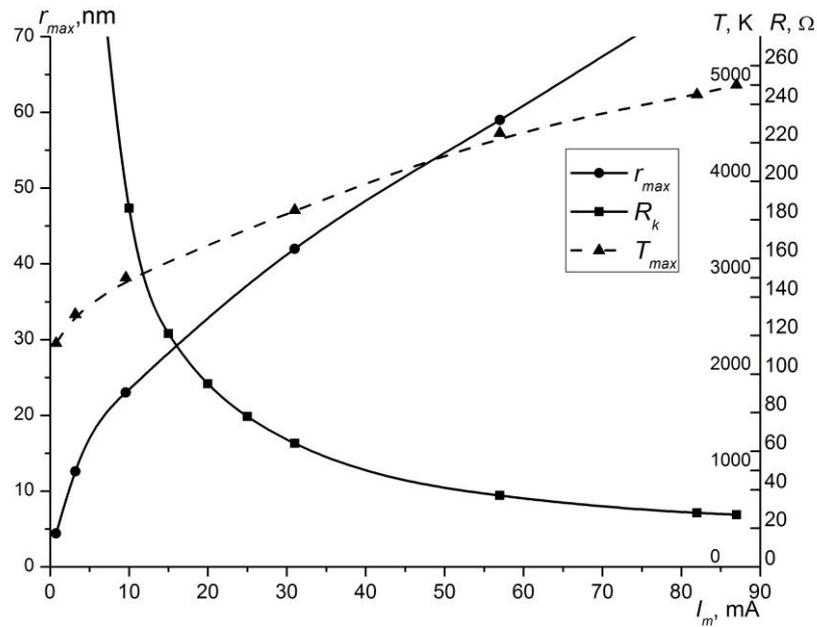


Рисунок 4.11 – Зависимости установившихся радиуса (r_{max}), сопротивления (R_k) и температуры (T_{max}) от максимального тока (I_m)

Это указывает на определяющую роль максимального тока разряда, формируемого как емкостью, так и током источника.

На рисунке 4.12 приведены радиальные зависимости установившейся температуры в середине пленки при различных максимальных токах. Виден существенный рост температуры на оси канала с ростом тока.

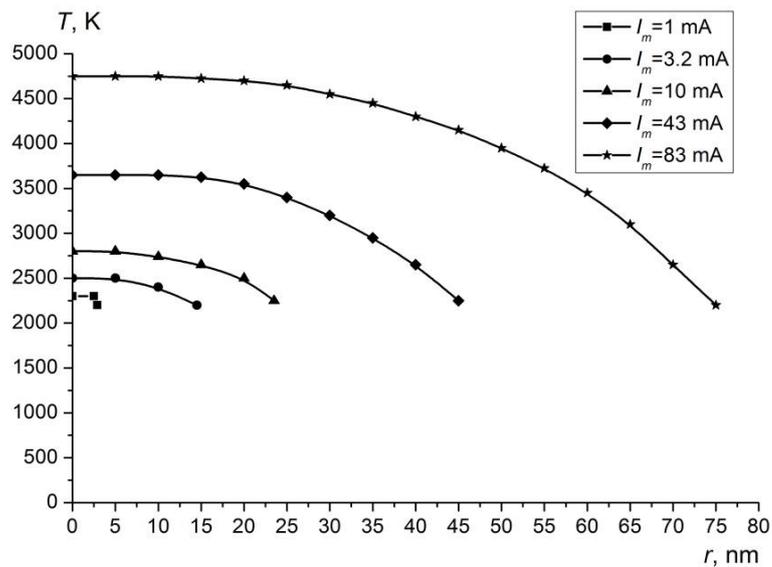


Рисунок 4.12 – Радиальные зависимости установившейся температуры в середине пленке при различных максимальных токах

В таблицах 4.1,4.2 приведены рассчитанные динамические характеристики проводящего канала (зависимости тока, напряжения, радиуса канала в середине пленки и сопротивления канала от времени) при различных токах ограничения

$$I_0 = \frac{U_0}{R_0} \text{ и емкостях } C=0,053 \text{ пФ и } C=5,3 \text{ пФ.}$$

Таблица 4.1– Динамические характеристики проводящего канала. $C_{\text{емк}}=0,053$ пФ

		t, нс					
		0,028	0,084	0,14	0,196	0,252	0,336
$I_0=0$	$I, \text{ мА}$	0,52	0,74	0,58	0,35		
	$U_k, \text{ В}$	4,03	3,02	2,14	1,12		
	$r_m, \text{ нм}$	3,1	4,35	4,4	4,4		
	$R_k, \text{ Ом}$	7750	4080	3680	3200		
$I_0=4 \text{ мА}$	$I, \text{ мА}$	0,53	1,61	2,7	3,16	3,1	3
	$U_k, \text{ В}$	4,08	3,47	2,6	1,65	1,3	1,06
	$r_m, \text{ нм}$	3,16	6,5	10,1	12,6	12,7	12,7
	$R_k, \text{ Ом}$	7700	2120	930	530	430	360
$I_0=15 \text{ мА}$	$I, \text{ мА}$	0,56	2,2	6,7	8,8	9,6	9,6
	$U_k, \text{ В}$	4,18	3,78	2,62	1,84	1,47	1,44
	$r_m, \text{ нм}$	3,3	8,3	16,2	22	22,5	22,5
	$R_k, \text{ Ом}$	7500	1720	391	210	170	150
$I_0=60 \text{ мА}$	$I, \text{ мА}$	0,6	3,8	14	25	31	31,5
	$U_k, \text{ В}$	4,2	4,06	3,25	2,58	2,1	2,1
	$r_m, \text{ нм}$	3,5	11	24	35	41	42
	$R_k, \text{ Ом}$	7000	1070	232	103	69	67
$I_0=200 \text{ мА}$	$I, \text{ мА}$	0,9	7	22	41,6	60	80
	$U_k, \text{ В}$	4,26	4,12	3,8	3,4	3	2,5
	$r_m, \text{ нм}$	4,2	13	27	44	58	74
	$R_k, \text{ Ом}$	4760	590	173	82	50	31

Таблица 4.2 – Динамические характеристики проводящего канала. $C_{\text{емк}}=5,3$ пФ

		t, нс						
		0,028	0,084	0,14	0,196	0,252	0,336	0,42
$I_0=4$ мА	I, мА	0,6	4,9	24,5	48	57	45	29
	U_k , В	4,03	4,28	4,13	3,72	2,60	1,90	1,13
	r_m , нМ	3,2	9,6	28	49	58	59	59
	R_k , Ом	3380	870	170	78	44	41	39
$I_0=80$ мА	I, мА	0,6	4,9	26	50	77	87	83
	U_k , В	4,3	4,28	4,14	3,79	3,23	2,3	2,1
	r_m , нМ	3,2	9,6	29	50	66	78	78
	R_k , Ом	3380	870	160	76	42	27	25
$I_0=200$ мА	I, мА	0,6	4,9	26	53	84,5	111	114
	U_k , В	4,3	4,28	4,16	3,88	3,48	2,70	2,4
	r_m , нМ	3,2	9,6	29	52	70	89,5	90
	R_k , Ом	3380	870	160	73	41	24	21

4.4 Приближенные аналитические аппроксимации

На основании полученных расчетных значений и зависимостей можно получить приближенные аналитические выражения. Прежде всего, можно отметить, что определяющими факторами, влияющими на расширение канала и его параметры, являются максимальный ток в канале, который хорошо аппроксимируется зависимостью:

$$I_m \approx \left(I_{mk}^{3/2} + I_{mc}^{3/2} \right)^{2/3}. \quad (4.6)$$

В (4.6) I_{mk} является током от внешней цепи, который определяется током ограничения источника или добавочным сопротивлением:

$$I_{mk} = \frac{U_{br}}{R_k + R_0} = \frac{I_o}{1 + \frac{R_k}{R_0}}, \quad (4.7)$$

а I_{mc} – есть эффективный емкостной ток, который в свою очередь хорошо аппроксимируется степенным законом (в единицах мА):

$$I_{mc} \approx 12 \cdot C^{0,9}. \quad (4.8)$$

В (4.8) емкость подставляется в «пФ». Ток I_{mc} – есть максимальный ток разряда только от емкости при $I_0=0$.

Также, максимальный радиус r_{max} (нм), средняя температура T_a (К) и общее сопротивление канала R_k (Ом) зависят от максимального тока (мА) на интервале $I_m=3-120$ мА как

$$r_{max} \approx 6,4 \cdot I_m^{0,56} \quad (4.9),$$

$$T_{cp} \approx 2300 \cdot I_m^{0,1} \quad (4.10),$$

$$R_k \approx 1240 \cdot I_m^{-0,85} \quad (4.11).$$

Максимальная площадь канала ($\pi \cdot r_k^2$) растет несколько быстрее, чем ток, а сопротивление канала падает медленнее, чем растет его площадь из-за увеличения температуры и удельного сопротивления канала. Некоторую роль играет и рост с током неоднородности сечения канала по его длине, так как канал сужается к электродам. Формулы (4.9-4.11) остаются справедливыми и при отсутствии плавления NiO, то есть при $r_m \leq 1,6$ нм, $I_m \leq 0,2$ мА.

После остывания канала в режиме «ON» сечение канала остается прежним, а сопротивление уменьшается за счет снижения удельного сопротивления. При комнатной температуре:

$$R_{k0} = \frac{R_k}{1 + 0,51 \left(\frac{T_{cp}}{T_0} - 1 \right)}. \quad (4.12)$$

В таблице 4.3 приведены сравнительные данные численного расчета и аналитических аппроксимаций. Кроме параметров I_m , r_m , T_m , T_{cp} , R_k приведены также средний радиус канала, определенный по его сопротивлению R_k и

средней проводимости канала $\sigma_{cp} = 0,91 \cdot 10^{-6} \left[1 + 0,51 \left(\frac{T_{cp}}{T_0} - 1 \right) \right]^{-1} (Ом \cdot м)^{-1}$ и

сопротивление канала после его остывания до 300 К (R_{k0}) по (4.12).

Таблица 4.3 – Сравнительные данные численного расчета и аналитических аппроксимаций

	$C_{емк} = 0,053$ пФ					$C_{емк} = 5,3$ пФ		
I_0 , мА	0	4	15	60	200	4	80	200
I_m , мА	0,8	3,16	9,6	31	82	56	87	114
I_m (4.6)	0,85	3,2	9,6	31	83	54,6	88	127
r_m , нм	4,4	12,7	23	42	74	58	78	90
r_m (4.9)	5,7	12,3	22,7	43,6	75	59,6	78,2	90,3
T_m , К	2340	2600	2920	3600	4960	4500	5060	5400
T_{cp} , К	2280	2480	2760	3180	3650	3400	3650	3880
T_{cp} (4.10)	2230	2580	2880	3240	3570	3446	3600	3700
R_k , Ом	4200	510	180	67	30	41	26	21
R_k (4.11)	1580	475	180	67	29,3	40,3	27,9	21,7
R_{k0} (4.12)	960	110	36	11	4,5	6,5	3,9	3
r_{cp} , нм	4,2	12	21	38	65	52	69	80

Сравнение показывает, что приближения (4.6), (4.8), (4.10) весьма близки к численным результатам во всей области рассматриваемых разрядных токов $1\text{ мА} < I_m \leq 120\text{ мА}$, приближения (4.9) и (4.11) для радиуса и сопротивления канала применимы при $I_m > 3\text{ мА}$.

Полученные результаты можно использовать и для других значений толщины слоя NiO. Действительно, пробойное напряжение будет пропорционально l , а емкость электродов обратно пропорционально l . Тогда заряд, протекаемый от емкости через канал, и максимальный ток не изменяются с пропорциональностью сопротивления канала его длине. Выражения для максимального тока и сопротивления канала (4.8) и (4.11) модифицируются для вариации длины канала l .

$$I_{mc} = 12 \cdot \left(\frac{U_0}{4,3} \cdot C \right)^{0,9} \quad (4.13)$$

$$R_k = 24,8 \cdot l \cdot (I_m)^{-0,85}. \quad (4.14)$$

Здесь $I_{мс}$, I_m – «мА», U_0 – «В», l – «нм», C – «пФ», R_k – «Ом».

Представляет интерес рассмотрение малых начальных радиусов канала (и малых токов), когда не достигается температура плавления оксида и канал не расширяется.

В таблице 4.4 приведены данные численных расчетов разрядного тока, сопротивления канала и температуры в средней плоскости канала.

Таблица 4.4 – Параметры канала при малых начальных радиусах пробоя

a , нм	U_k , В	I_m , мА	R_k , Ом	T_m , К	$T(a)$, К
1,5	4,3	0,16	27000	2140	2100
1	4,3	0,078	55000	1810	1790

Рассчитанные параметры существенно зависят от начального радиуса канала, при этом приближенные аналитические выражения (4.9÷4.14) неприменимы.

Начальный радиус определяется электронными механизмами стримерного пробоя и имеет большой разброс значений. Это приведет, во-первых, к нестабильности пробойного тока; во-вторых, к изменению состояния канала (или его восстановлению к окислу) при снижении напряжения после разряда емкости.

4.5 Сравнение с упрощенными моделями и экспериментами

Численные расчеты рассматривают развитие процессов во времени и учитывают изменение параметров структуры, как по радиусу, так и по толщине включая электроды. Сначала сравним численные результаты с результатами упрощенных моделей.

Время растекания тепла в однородном полом цилиндре имеет несколько большее значение, чем численный расчет из-за ухода тепла вдоль оси на

электроды. Так при $a = 13 \cdot 10^{-9}$ м имеем $\tilde{t}_{ycm} = 1,2 \cdot 10^{-9}$ с из $t_{ycm} = \frac{t' a^2 c \gamma}{\lambda}$ выражения, а при численных значениях $t_{пл} \approx (0,2 \div 0,5) \cdot 10^{-9}$ с.

Упрощенная аналитическая модель плавления окружающего канал NiO в виде полого однородного цилиндра (2.15) дает несколько большие значения радиуса расплавления, но близкие значения времени его достижения. Так разряд емкости $C_{емк} = 0,053$ пФ по упрощенной модели дает значения $\tilde{r}_{пл} = 5,1 \cdot 10^{-9}$ м, $\tilde{t}_{пл} = 1,2 \cdot 10^{-10}$ с, численные значения $r_{пл} = 4,4 \cdot 10^{-9}$ м, $t_{пл} = 2 \cdot 10^{-10}$ с. При $C_{емк} = 5,3$ пФ, соответственно $\tilde{r}_{пл} = 72 \cdot 10^{-9}$ м, $\tilde{t}_{пл} = 5 \cdot 10^{-10}$ с и $r_{пл} = 58 \cdot 10^{-9}$ м, $t_{пл} \sim 5 \cdot 10^{-10}$ с.

Близкие значения дают обе модели и минимального начального радиуса канала ($\tilde{r}_{min} = 2,1$ нм; $r_{min} = 1,6$ нм), для которого уже возможен процесс проплавления окружающего NiO и расширения канала. В целом аналитические модели качественно правильно оценивают происходящие процессы.

Теперь сравним результаты вычислений с экспериментальными данными. В нашем эксперименте (пункт 2.1) пленка NiO толщиной 50 нм пробивалась напряжением формовки $U_0 = 4,3$ В через сопротивление $R_0 = 1$ кОм. Межэлектродная емкость составляла 0,053 пФ, а с учетом подводов полная паразитная емкость составила $C_{емк} = 0,079$ пФ. По начальному наклону вольт-амперной характеристики «ОН» состояния, где еще отсутствует нагрев канала, сопротивление составило $90 \div 100$ Ом, что можно принять за сопротивление канала при комнатной температуре R_{k0} . С увеличением тока сопротивление канала возрастало за счет роста температуры до ~ 200 Ом при $I_k \sim 3$ мА.

Эффективный емкостной ток согласно (4.8) равен $I_{mc} = 12C^{0,92} = 1,16$ мА, ток ограничения $I_0 = U_0/R_0 = 4,3$ мА. Максимальный ток от внешней цепи согласно (4.7) $I_{mk} = \frac{I_0}{1 + \frac{R_k}{R_0}}$, где согласно (4.11) $R_k = 1240 \cdot I_m^{-0,85}$. В результате

для I_m из выражения (4.6) получаем иррациональное уравнение:

$$I_m^{3/2} = \left(\frac{I_0}{1 + \frac{1200}{I_m^{0,85} \cdot R_0}} \right)^{3/2} + I_{mc}^{3/2} \quad (4.15),$$

из которого получаем значение $I_m = 3,5$ мА.

Тогда средняя температура канала при пробое по (4.10) равна $T_{cp} = 2300 \cdot I_m^{0,1} = 2600$ К, а сопротивление канала при комнатной температуре по

$$(4.12) \quad R_{k0} = \frac{R_k}{1 + 0,51 \left(\frac{T_{cp}}{T_0} - 1 \right)} \approx 90 \text{ Ом}, \quad \text{где из (4.11)} \quad R_k = \frac{1240}{I_m^{0,85}} = 430 \text{ Ом}.$$

Учитывая, что (4.10) дает несколько завышенное значение T_{cp} при $I_0 \sim 4$ мА (таблица 4.3), расчетные и экспериментальные значения R_{k0} весьма близки. Максимальный радиус канала в центре пленки по (4.9) будет равен $r_m \approx 6,4 \cdot I_m^{0,56} = 13,0$ нм.

Изменение радиуса канала по длине согласно рисункам 4.2 – 4.8 можно

приблизительно описать выражением $r(z) \approx r_m \left[1 - 0,2 \left(\frac{z}{l/2} \right)^2 \right]$ при среднем

радиусе $r_{cp} \approx 0,93$ нм, $r_m = 12,6$ нм.

Сравним результаты вычислений с другими экспериментальными данными. К сожалению, паразитная емкость в большинстве работ по преключению в NiO при проведении эксперимента редко измерялась. Отметим работу [75], где исследована структура Pt/NiO/Pt при $l=50$ нм и малой площадью электродов $S = 0,5$ мкм² с измеренной электрической емкостью $C_{\text{експ}} \approx 0,05$ пФ. Пробой в [75] происходил при напряжении 2,4 В, а внешний ток определялся источником тока I_0 . При $I_0 > 0,2$ мА, ток в структуре (примерно равный предельному току перехода «ON-OFF» I_m) был пропорционален I_0 , и для I_m в [75] получены следующие значения: $I_m = (0,4 \pm 0,1)$ мА при $I_0 = 0,15$ мА, $I_m = (0,8 \pm 0,1)$ мА при $I_0 = 0,53$ мА, $I_m = (1,0 \pm 0,1)$ мА при $I_0 = 0,8$ мА. Наши расчетные значения по формулам (4.13) и (4.6) дают соответственно $I_m=0,48$ мА;

0,81 мА; 1,03 мА. Таким образом, с учетом экспериментальных разбросов аналитические аппроксимации дают близкие результаты, особенно с увеличением внешнего тока источника.

4.6 Выводы по главе 4

1. Проводящий канал можно идентифицировать с областью проплавления NiO при пробое промежутка.

2. Установившееся сечение проводящего канала неоднородно по длине, сужаясь к электродам, и определяется максимальным разрядным током, существенный вклад в который вносит паразитная емкость.

3. Существует минимальный радиус канала $r_{\min} = 1,6$ нм, разрядный ток $I_{\text{пл}} \approx 0,1 \div 0,2$ мА, определяемые развитием стримеров, при которых плавление окисла NiO не достигается за счет эффективного отвода тепла, и расширение канала отсутствует. В этом случае канал не стабилизирован и может иметь большой разброс параметров.

4. Температура в канале при протекании тока может существенно превысить температуру плавления NiO и имеет неоднородный по толщине структуры характер, включая электроды.

5. Для оценки радиуса расширения канала его сопротивления и температуры в области $I_m > 0,2$ мА применимы приближенные аналитические аппроксимации: (4.6), (4.7), (4.9), (4.13), (4.14).

6. Повторный пробой из «OFF» в «ON» происходит при меньшем напряжении за счет остатка проводящих частей канала у электродов и уменьшением длины пробиваемого слоя NiO. С учетом этого указанные приближения остаются в силе.

5 МОДЕЛИРОВАНИЕ ДИФФУЗИОННОГО МЕХАНИЗМА ОКИСЛЕНИЯ ПРОВОДЯЩЕГО КАНАЛА В ПЕРЕКЛЮЧАТЕЛЬНОЙ СТРУКТУРЕ С ПАМЯТЬЮ Pt/NiO/Pt

5.1 Исходные положения. Система уравнений

Рассматривается процесс перехода из проводящего состояния «ON» в высокоомное состояние «OFF» за счет окисления проводящего канала никелевыми вакансиями при повышении температуры при прохождении тока.

В качестве схемы расчета взята экспериментальная структура с толщиной пленки NiO равной 50 нм, и площадью электродов $S = 5 \times 5$ мкм² (пункт 2.1). Будем рассматривать проводящий канал, образованный в режиме ЭФ разрядом паразитной емкости $C_{\text{емк}} = 0,079$ пФ и внешней цепью $I_m = 3,5$ мА с $U_0 = 4,3$ В через сопротивление 1 кОм (пункт 2.5). Исходный проводящий канал имел цилиндрическую форму, слегка сужающуюся по радиусу (с 12,6 нм до 10 нм) от центра к электродам. Такая форма канала соответствовала его измеренному сопротивлению (~ 100 Ом) в исходном «ON» состоянии при $T=T_0$.

Изменение радиуса канала по длине принято в соответствии с моделированием процесса формовки (рис. 4.2–4.8) $r(z) \approx r_m \left[1 - 0,2 \left(\frac{z}{l/2} \right)^2 \right]$, где $r_m = 12,6$ нм, координата z отсчитывается от средней плоскости пленки.

Электрическая схема формирования тока через структуру принята аналогично исследованию перехода «OFF–ON» (рис.4.1). Ролью электрической емкости электродов пренебрегалось из-за малого и достаточно медленно изменяющегося напряжения на низкоомном сопротивлении канала.

Добавочное сопротивление R_0 принималось в пределах 100 Ом – 2 кОм, что приблизительно соответствовало переходу от источника напряжения к источнику тока.

Расчет совместного нестационарного распределения температуры и плотности тока и концентрации вакансий в процессе сужения проводящего канала производился с учетом передачи тепла, как в радиальном направлении, так и на электроды, а также зависимости параметров материала (теплоемкость, теплопроводность и электропроводность и коэффициент диффузии) от температуры и потерь тепла на плавление NiO.

Система уравнений теплопроводности и непрерывности тока и диффузии в дискретном виде в цилиндрической геометрии с радиальной r и аксиальной z (вдоль оси канала, $z = 0$ – середина пленки) координатами для безразмерных компьютерных переменных имеет вид:

$$\begin{aligned}
 T_{i,j} = & \left\{ T_{i,j} \left[1 - \frac{d\lambda_{i,j}}{1,005C_{i,j}} \left(\frac{\lambda_{i+1,j}}{f_i^2} + \frac{\lambda_{i,j+1}}{f_j^2} \right) \right] + \frac{d\lambda_{i,j}}{C_{i,j}} \left[T_{i+1,j} \left(\frac{\lambda_{i+1,j}}{1,005f_i^2} + \frac{\lambda_{i,j}}{2f_i b_i} \right) + \right. \right. \\
 & + T_{i-1,j} \left(\frac{\lambda_{i-1,j}}{0,995f_i^2} - \frac{\lambda_{i,j}}{2f_i b_i} \right) + \frac{T_{i,j+1}\lambda_{i,j+1}}{1,005f_j^2} + \frac{T_{i,j-1}\lambda_{i,j-1}}{0,995f_j^2} + \frac{Q_{i,j}}{\lambda_{i,j}} \left. \right\} \cdot \left[1 + \frac{d\lambda_{i,j}}{C_{i,j}} \cdot \right. \\
 & \left. \left. \left(\frac{\lambda_{i-1,j}}{0,995f_i^2} + \frac{\lambda_{i,j-1}}{0,995f_j^2} \right) \right]^{-1} \quad (5.1)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 U_{i,j} = & \left\{ U_{i,j} \left[1 - \frac{d\sigma_{i,j}}{1,005} \left(\frac{\sigma_{i+1,j}}{f_i^2} + \frac{\sigma_{i,j+1}}{f_j^2} \right) \right] + d\sigma_{i,j} \left[U_{i+1,j} \left(\frac{\sigma_{i+1,j}}{1,005f_i^2} + \frac{\sigma_{i,j}}{2f_i b_i} \right) + \right. \right. \\
 & + U_{i-1,j} \left(\frac{\sigma_{i-1,j}}{0,995f_i^2} - \frac{\sigma_{i,j}}{2f_i b_i} \right) + \frac{U_{i,j+1}\sigma_{i,j+1}}{1,005f_j^2} + \frac{U_{i,j-1}\sigma_{i,j-1}}{0,995f_j^2} \left. \right\} \cdot \left[1 + d\sigma_{i,j} \left(\frac{\sigma_{i-1,j}}{0,995f_i^2} + \right. \right. \\
 & \left. \left. + \frac{\sigma_{i,j-1}}{0,995f_j^2} \right) \right]^{-1} \quad (5.2)
 \end{aligned}$$

$$\Delta n_{i,j} = dD_{i,j} \left[n_{i+1,j} \cdot \left(\frac{D_{i+1,j}}{1,005f_i^2} + \frac{D_{i,j}}{2f_i b_i} \right) + n_{i-1,j} \left(\frac{D_{i-1,j}}{0,995f_i^2} - \frac{D_{i,j}}{2f_i b_i} \right) + n_{i,j+1} \frac{D_{i,j+1}}{1,005f_j^2} + \right.$$

$$+ n_{i,j-1} \frac{D_{i,j-1}}{0,995f_j^2} - n_{i,j} \left[\frac{D_{i+1,j}}{1,005f_i^2} + \frac{D_{i-1,j}}{0,995f_i^2} + \frac{D_{i,j+1}}{1,005f_j^2} + \frac{D_{i,j-1}}{0,995f_j^2} \right] \quad (5.3)$$

Здесь $d = \frac{\tau}{h^2}$; $\beta_i = \frac{m^i + m^{i-1} - 2}{2(m-1)}$; $r_i = h\beta_i$; $z_j = h\beta_j$; $m = 1,01$; $h_i = hf_i$; $f_i = m^{i-1}$;

$$Q_{i,j} = \frac{\sigma_{i,j}}{4} \left[\frac{(U_{i+1,j} - U_{i-1,j})^2}{f_i^2} + \frac{(U_{i,j+1} - U_{i,j-1})^2}{f_j^2} \right].$$

Безразмерные значения параметров структуры принимались согласно таблице 3.2, коэффициент диффузии никелевых вакансий

$D' = 0,225 \exp\left(-\frac{47,3}{T'}\right)$. Компьютерные значения параметров в (5.1), (5.2), (5.3)

равны (волнистые черты опущены): $\lambda_{i,j} = \sqrt{\lambda'_{i,j}}$; $\sigma_{i,j} = \sqrt{\sigma'_{i,j}}$; $D_{i,j} = \sqrt{D'_{i,j}}$. В качестве уравнения (5.3) вместо (3.32) использовано уравнение для изменения концентрации $\Delta n_{i,j} = n_{i,j}^{k+1} - n_{i,j}^k$ (3.31).

5.2 Алгоритм вычислений

Шаг по координате в (5.1–5.3) $h = \Delta r/l$ с целью пространственного разрешения принимается, как и при моделировании пробоя $h = 0,005$.

Коэффициенты λ'/c' и σ' в первых двух уравнениях имеют порядок единицы, а коэффициент D' в третьем уравнении даже при $T = 1000$ К ($T' = 3,33$) на шесть порядков меньше. Тогда временное развитие процесса окисления (переноса никелевых вакансий) происходит на шесть порядков медленнее, чем время установления температуры и проводимости. При сохранении малого для выполнения устойчивости решения уравнения для температуры $\tau = 1 \cdot 10^{-4}$ с общее время счета было бы чрезвычайно большим.

Для возможности проведения вычислений нами принята методика применения разных интервалов времени: для уравнений (5.1, 5.2) $\tau = 1 \cdot 10^{-4}$ с, а для решения (5.3) $\tau_1 = 5 \cdot 10^{-3}$ с. Однако установление температуры и потенциала

решалось за 50 шагов по τ , т.е. за одно время интервала τ_1 , затем пропускалась 20÷60 шагов по τ_1 , когда решалось только уравнение (5.3) и далее снова уточнялась температура с шагом τ на интервале τ_1 . В качестве проверки этой методики один раз все три уравнения считались с одинаковыми интервалами $\tau=\tau_1=2\cdot 10^{-4}$ с (со временем расчета несколько дней). Результаты оказались идентичными вследствие быстрого установления температуры и малого ее изменения за интервал τ_1 с.

Для устойчивости решений использовался явно-неявный двухсторонний (перемежающий) метод прохода счетной области сначала слева-направо, снизу-вверх, затем справа-налево, сверху-вниз.

В начальных условиях на внешних границах электродов и слоя NiO и внутри счетной области принималась температура $T_0=300\text{K}$ с соответствующими значениями параметров $C_{i,j}$, $\lambda_{i,j}$, $\sigma_{i,j}$, $D_{i,j}$. Внутри канала концентрация вакансий $n_{i,j}$ и степень ее накопления $A_{i,j}$ принималась равной нулю. Вне канала $n_{i,j} = 1$; $A_{i,j} = 1$.

Далее решаются уравнения (4.2), (4.3) в цикле 50 раз с увеличением времени на $50\tau = \tau_1$.

На каждом шаге по времени по расчетным потенциалам определялась плотность тока, а по полному току I уточнялось падение напряжения на структуре по схеме:

$$U_{new} = \frac{U_o \cdot I}{R_0 \cdot I + U_{old}} \quad (5.4),$$

где U_{new} и U_{old} – новое (уточненное) и старое расчетные падения потенциала соответственно, U_o – напряжение источника.

После этого решается уравнение (5.3) для изменения концентрации $\Delta n_{i,j}$ с шагом во времени τ_1 . Далее для ячеек канала производится проверка: если $A_{i,j} < 1$, то добавка концентрации идет на накопление $A_{i,j} = A_{i,j} + \Delta n_{i,j}$, а концентрация $n_{i,j}$ не изменяется. Практически это касается только граничных ячеек канала. В остальных ячейках проводящего канала $\Delta n_{i,j} = 0$, т.к. $n_{i+1,j} = 0$ справа и слева $n_{i-1,j} = 0$.

При достижении в граничной ячейке канала $A_{i,j}=1$ ячейка переходит из канала в окисел. В области окисла, где $A_{i,j}=1$ изменяется концентрация $n_{i,j} = n_{i,j} + \Delta n_{i,j}$.

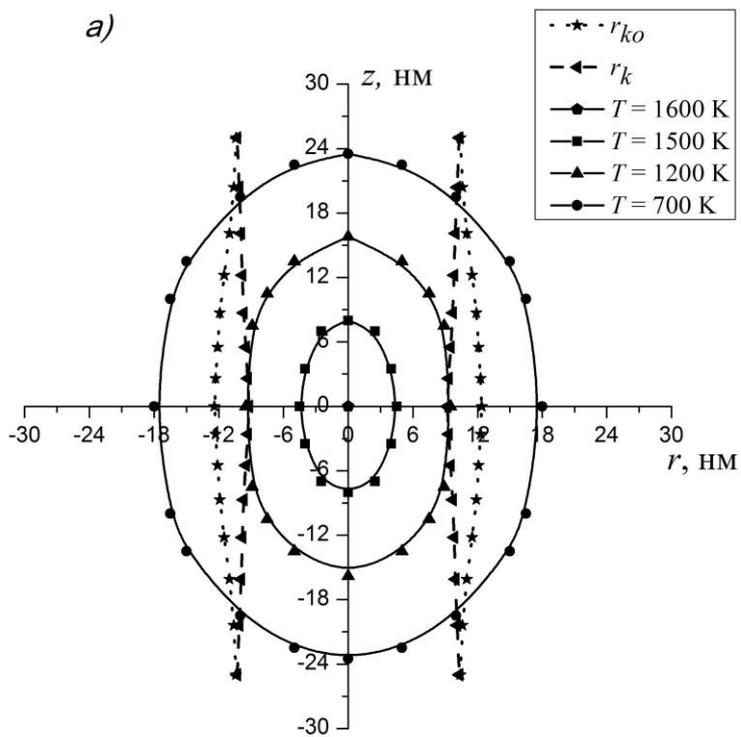
Через определенные моменты времени выводятся значения температуры, потенциала и проводимости, по которым можно определить границы канала.

5.3 Результаты вычислений

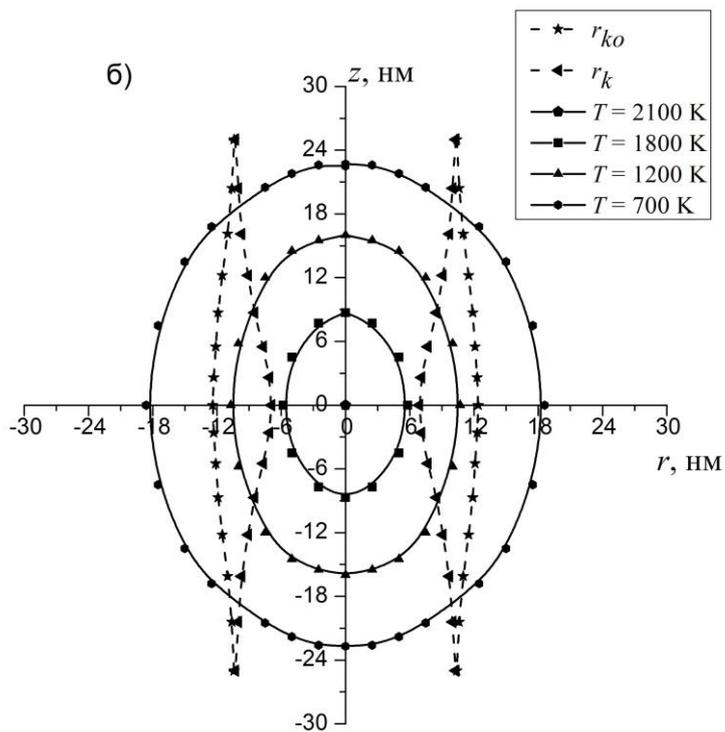
Сначала исследовался режим $R_0 = 100$ Ом и $U_0 = 1,1$ В. Канал разряда очень медленно сужался до $t \approx 1$ мс, выравнивался по длине на радиусе ~ 10 нм, после чего стабилизировался. Ток установился на уровне 2,7 мА, температура на границе канала была в пределах 500–800 К, увеличиваясь к середине канала. Однако низкая температура в окружающем окисле NiO затрудняет диффузию оттуда никелевых вакансий. Кроме того, низкое значение R_0 ведет к существенному уменьшению тока при росте сопротивления канала из-за его сужения.

На рисунках 5.1 приведены распределения температуры в структуре и границы проводящего канала в различные моменты времени со следующими входными данными: напряжение источника $U_0=1,69$ В, добавочное сопротивление $R_0 = 200$ Ом, начальное сопротивление канала при $T=T_0 - 100$ Ом.

a)



б)



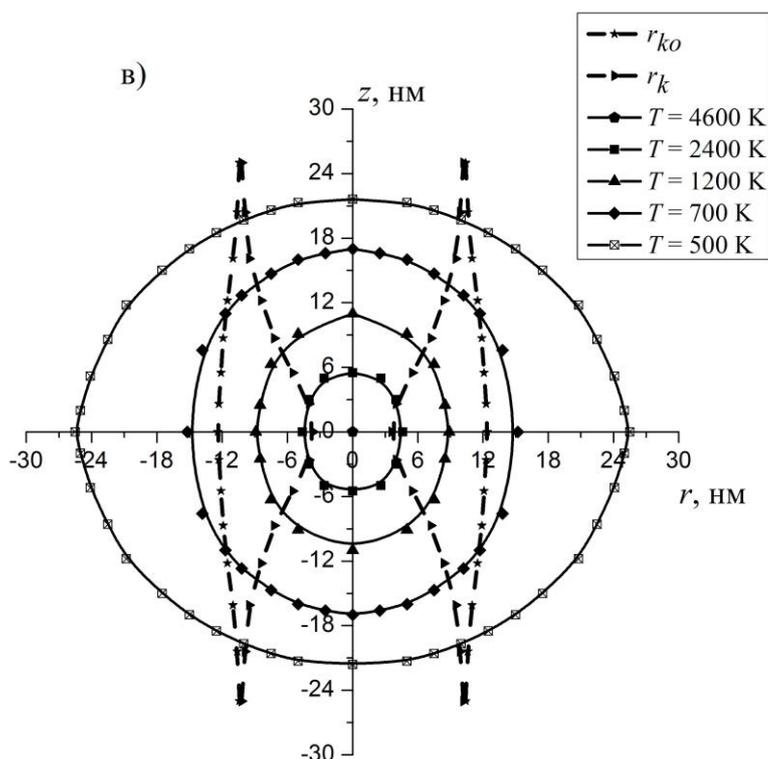


Рисунок 5.1 – Распределение температуры и граница канала при $U_0=1,69\text{В}$, $R_0=200\text{Ом}$ при: а) $t = 0,06\text{ нс}$; б) $t = 0,12\text{ нс}$; в) $t = 0,48\text{ нс}$

Начальный ток через структуру составлял 5,6 мА, а напряжение на структуре 0,585 В. Однако уже через несколько наносекунд за счет нагрева канала до $\sim 1000\text{ К}$ сопротивление возрастает до 220 Ом, ток уменьшается до 3,8 мА при напряжении 0,83 В. Далее с течением времени происходит медленное сужение канала в центральной части с повышением температуры в центре канала и уменьшением на периферии.

Это сопровождается ростом сопротивления канала, уменьшения тока даже при увеличении напряжения на нем (таблица 5.1).

Таблица 5.1 – Временное изменение параметров канала

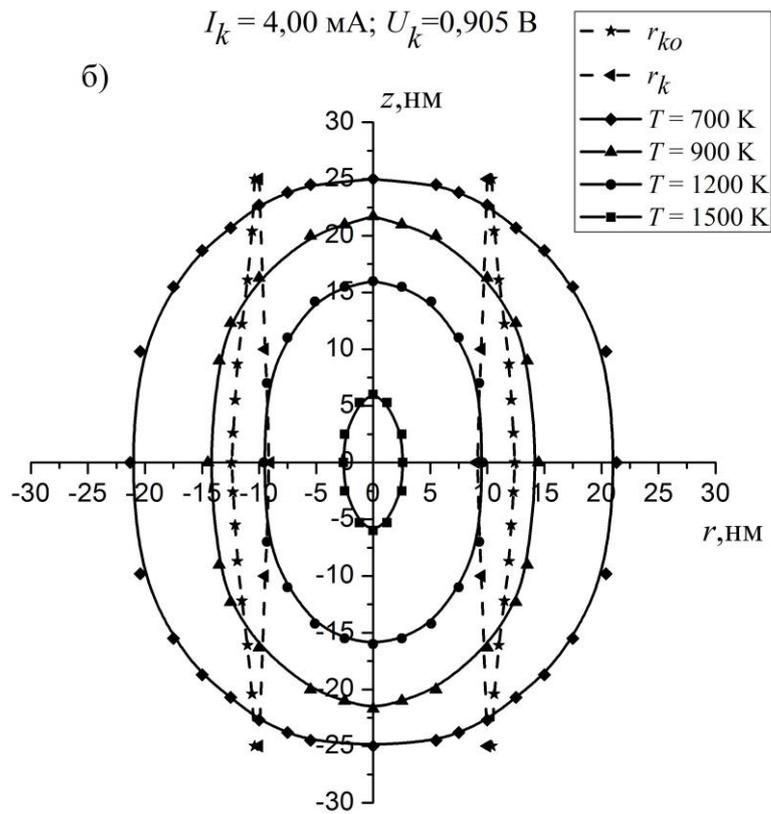
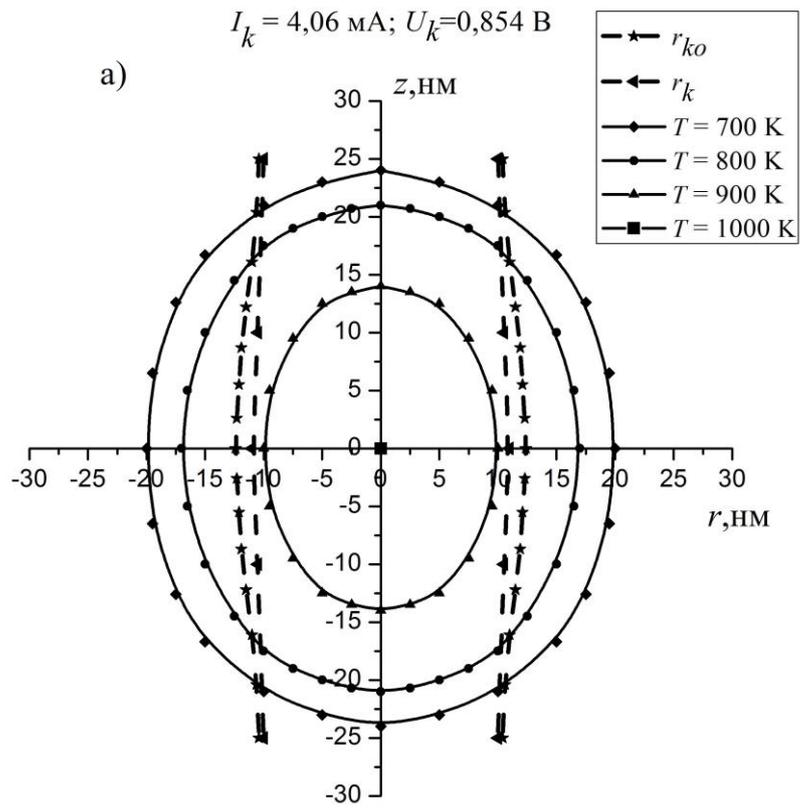
t , мс	I_k , мА	R_k , Ом	U_k , В
0,06	3,7	257	0,95
0,12	3,1	345	1,07
0,48	1,5	1000	1,5

Рост температуры в центре канала при уменьшении тока можно объяснить увеличением его плотности. Полное прекращение тока происходит

при $t \approx 1$ мс, что близко результатам эксперимента [129]. Отметим, что это время соответствует значению (2.24) при $T \approx 900$ К, что близко к средней температуре на границе канала на начальной стадии окисления.

При напряжениях источника U_0 ниже 1,6 В происходит только небольшое сужение центральной части канала, и затем канал стабилизируется, то есть переход «Reset» не осуществляется. Со значениями U_0 выше 1,6 В диффузия приводит к перекрытию канала окислом в его центральной части со временем, резко падающим с ростом напряжения источника, что соответствует эксперименту [77]. Можно отметить значительную неоднородность температуры в канале и даже на электродах. Так, области канала, прилегающие к электродам, остаются не полностью окисленными из-за недостаточной температуры для активации диффузии в течение всего времени перехода. Таким образом, неоднородный характер перехода по температуры приводит к сильному пространственно-временному изменению коэффициента диффузии и, как следствие, делает некорректной оценку окисления канала с $D \approx \text{const}$. С другой стороны, сама картина перекрытия канала в его центральной части близка к предполагаемой в работах [70,127,77].

На рисунке 5.2 приведены распределения температуры в структуре и границы проводящего канала с напряжением источника $U_0=9,3$ В и добавочным сопротивлением $R_{ad}=2$ кОм, что при $R_{ad} \gg R_k$ близко к процессу перехода в «OFF» состояние с заданием тока внешней цепью. В этом случае вначале сужение канала из-за малой температуры идет очень медленно, но затем процесс окисления в центральной части ускоряется и за время менее 100 мкс канал схлопывается. Сильное уменьшение времени перекрытия канала окислом определяется ростом до 4 мА тока Reset. Можно также отметить, что окисление затрагивает и области, прилегающие к электродам.



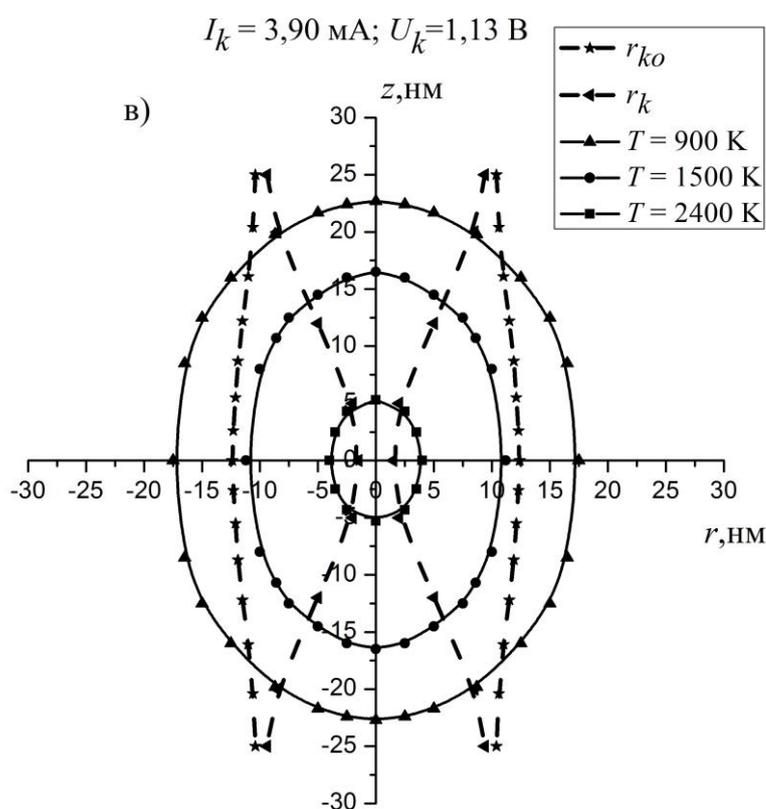


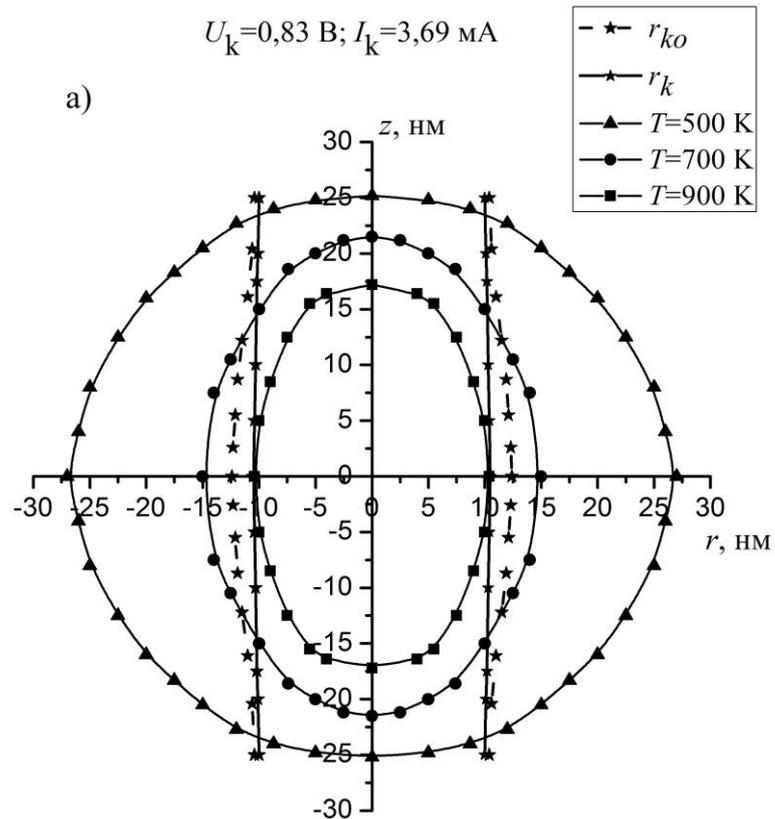
Рисунок 5.2 – Распределение температуры и границы проводящего канала при $U_0 = 9,3 \text{ В}$, $R_0 = 2 \text{ кОм}$ при: а) $t = 28 \text{ мкс}$, б) $t = 56 \text{ мкс}$, в) $t = 84 \text{ мкс}$

Таким образом, сильный рост сопротивления канала из-за его нагрева и сужения в процессе перехода в «OFF» состояние определяет условия формирования предельного тока для случаев подачи импульса на структуру: 1) с заданием тока внешней цепью или 2) с заданием напряжения через малое балластное сопротивление. В первом случае при подаче импульса тока (или напряжения при большом добавочном сопротивлении) уменьшается начальный нагрев из-за низкого сопротивления канала, но если диффузия началась, процесс будет ускоряться за счет увеличения плотности тока. Во втором варианте большой начальный ток ведет к быстрому увеличению температуры и диффузии, но затем рост сопротивления уменьшает ток и диффузия замедляется.

В обоих случаях необходимо обеспечить предельный ток через структуру при ее нагретом состоянии, когда ее сопротивлению увеличивается в $2 \div 2,5$ раза при средней температуре в канале $\sim 1000 \text{ К}$. Значение этого предельного тока

определяется начальным диаметром канала, который в свою очередь определяется примерно таким же значением предельного тока перехода в «ON» состояние [75,129]. В нашем эксперименте для начального радиуса канала в центре ($12,6 \div 13$ нм) предельный ток Set составил ($3,2 \div 3,5$ мА, минимальный (критический) ток Reset – 3,6 мА. При увеличении тока Reset до 4 мА время переключения уменьшается существенно (на порядок), то есть в целом соответствует результатам [77].

Для подтверждения этого нами было уменьшено напряжение источника U_0 с 9,3 В до 8,2 В в режиме рисунков 5.2, т.е. при $R_0 = 2$ кОм. Результаты вычислений приведены на рисунках 5.3. Время перекрытия канала выросло на порядок до 820 мкс при токе перехода $\sim 3,7$ мА.



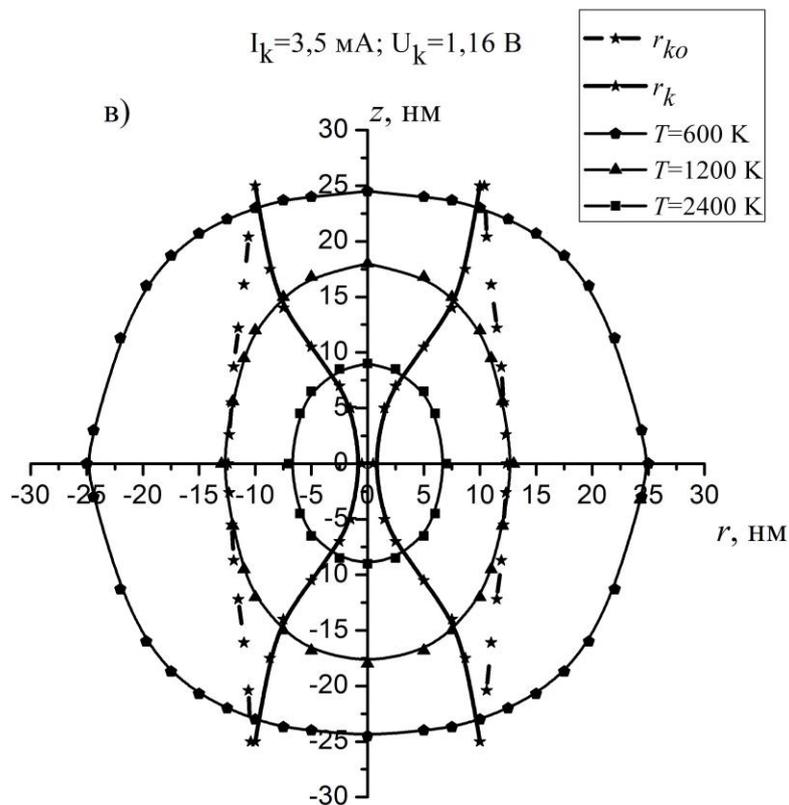
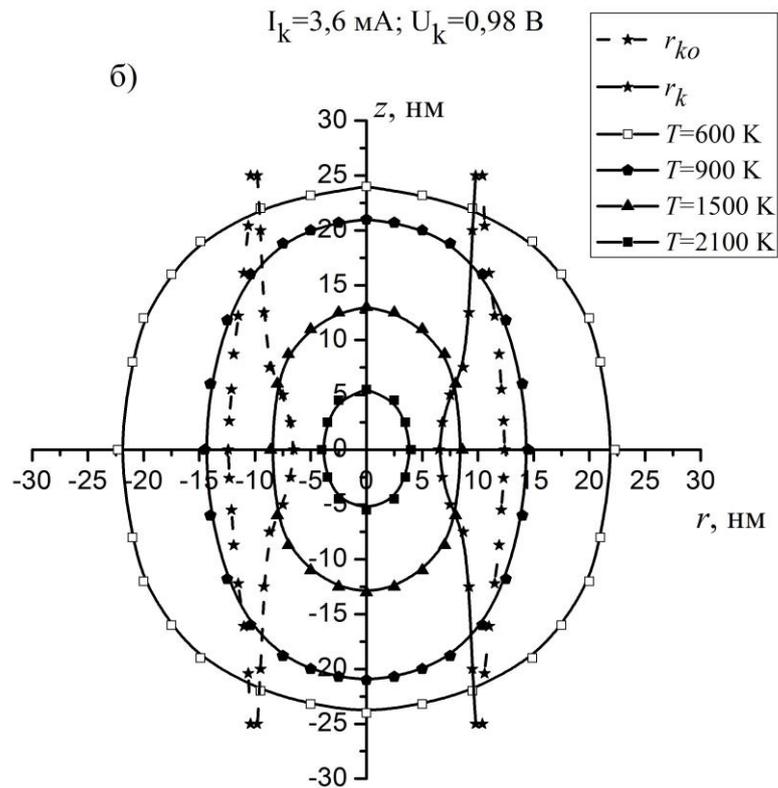


Рисунок 5.3 – Распределение температуры и граница канала при $U_0 = 8,2 \text{ B}$, $R_0=2\text{k}\Omega$ при: а) $t = 460 \text{ мкс}$, б) $t = 800 \text{ мкс}$, в) $t = 820 \text{ мкс}$

Сравним ток перехода из «ON» в «OFF» (I_{res}) с максимальным током при пробое в переходе «OFF–ON» (I_m). В нашем эксперименте эти токи были

близки: $I_m = (3,2 \div 3,5)$ мА; $I_{res} \approx (3,6 \div 3,7)$ мА – наименьший ток перехода в «OFF» состояние.

В работе [75] показано, что если включить в ток I_{set} кроме тока источника еще ток разряда паразитной емкости, то в области $0,2 \text{ мА} < I_{set} \leq 10 \text{ мА}$, I_{reset} лишь немного (~ на 20% – 30%) превышает ток I_{set} . Емкость начинает влиять на ток I_{set} при следующих значениях: $C = 0,01$ пФ при $I_{set} < 0,2$ мА, $C = 0,05$ пФ при $I_{set} \leq 0,8$ мА. В работах [127,133] исследованы режимы малых токов. Показано, что при очень малых емкостях $C \ll 1$ пФ $I_{res} \approx 1,2 \cdot I_{set}$. Однако при токах $I_{set} \leq 0,2 \div 0,3$ мА возникают большие разбросы (до порядка величины) тока I_{res} .

Оценим ток I_{res} исходя из приближенных аналитических выражений (4.10÷4.14). Сопротивление канала в нагретом состоянии согласно (4.14) $R_k = 24,8 \cdot l$ (нм) $I_m^{-0,85}$ (мА). Средняя температура канала по (4.10) $T_{cp} \approx 2300 \cdot I_m^{0,1}$.

Зависимость сопротивления от температуры по (4.12) $R_{k0} = \frac{R_k}{1 + 0,51 \left(\frac{T_{cp}}{T_0} - 1 \right)}$.

Будем считать средней температурой канала при переходе в состояние «OFF» $T_{res} \approx 900$ К. Тогда сопротивление канала при этой температуре будет

$R_{kres} = \frac{R_k \left[1 + 0,51 \left(\frac{T_{res}}{T_0} - 1 \right) \right]}{1 + 0,51 \left(\frac{T_{cp}}{T_0} - 1 \right)}$. Подставляя сюда R_k , T_{cp} , получим

$$R_{res} = \frac{24,8 \cdot l(\text{нм}) \cdot I_m^{-0,85}(\text{мА}) [0,49 + 0,001 + T_{res}]}{0,49 + 3,91 \cdot I_m^{0,1}}$$

Примем напряжение перехода в «OFF» состояние на основании многих экспериментов $U_{res} \approx 0,016 \cdot l$. При $T_{res} \approx 900$ К для $I_{res} = \frac{U_{res}}{R_{res}}$ приблизительно получим $I_{res} \approx 1,3 \cdot I_m^{0,95}$ (мА), при $T_{res} \approx 1000$ К $I_{res} \approx 1,3 \cdot I_m^{0,95}$ (мА), что согласуется с экспериментом.

5.4 Выводы по главе 5

1. Исчезновение металлической проводимости канала и переход в состояние «OFF» определяется окислением никеля диффузией никелевых вакансий при достижении в канале средней температуры 900–1000К за счет джоулевого выделения тепла.

2. Процесс диффузии имеет пороговый характер из-за сильной зависимости коэффициента диффузии от температуры.

3. Сильная неоднородность температуры по радиусу и толщине структуры приводит к еще большей неоднородности коэффициента диффузии. В результате диффузионный процесс, имеющий нелокальный характер, сильно усложняется и не может быть описан упрощенной моделью.

4. Пространственное окисление канала имеет вид перетяжки его центральной части, что близко к предположениям работ [68, 102,127].

5. Время окисления канала составляет порядка миллисекунды при токах близких к пороговым и резко уменьшается на порядок величины при увеличении тока ~ 10%.

6. Значение критического порогового тока определяется начальным диаметром канала, который в свою очередь определяется примерно таким же значением максимального тока при пробое при переходе в «ON» состояние.

7. На процесс перехода в «OFF» состояние оказывает влияние условий формирования предельных токов перехода (подача импульсного напряжения на структуру, задание тока внешней цепью или подача напряжения через балластное сопротивление). Это объясняется сильным ростом сопротивления канала из-за его нагрева и сужения.

При подаче импульса напряжения из-за большого начального тока происходит быстрый рост температуры, и ускоряется диффузия. Затем из-за роста сопротивления ток уменьшается, и диффузия сильно замедляется.

При подаче импульса тока (или при большом добавочном сопротивлении) уменьшается начальный нагрев из-за низкого сопротивления канал. Но если

диффузия началась, процесс будет ускоряться за счет увеличения плотности тока.

Во всех случаях необходимо обеспечить пороговый ток через структуру при ее нагретом состоянии, когда ее сопротивление увеличивается в $2\div 2,5$ раза при средней температуре в канале около 1000К.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Обзор многочисленных публикаций показал на возможность использования эффекта резистивного переключения с памятью на основе бинарных оксидов переходных металлов (V, Ti, Nb, Ta, Ni и др), среди которых оксид никеля является наиболее перспективным. Отмечается простота их синтеза и возможность переключения униполярными импульсами, что упрощает схемотехнику конечной ReRAM микросхемы. Однако параметры ReRAM структур значительно различаются и зависят от технологии получения структуры, режима формовки и некоторых сопутствующих факторов, в частности паразитной емкости подвода и т.д. Теоретическая сторона вопроса до сих пор не разработана. Физические механизмы переключения между состояниями переключения «ON» и «OFF» не определены, имеются различные предположения, основанные на упрощенных моделях. Наиболее предпочтительными рассматриваются два типа механизмов перехода.

Один из них – электронные процессы без изменения структуры окисла. В электрическом поле происходит ионизация имеющихся в большом количестве примесей (Ni и O). Положительный заряд металлических островков создает условия для тунелирования электронов. В то же время срыв электронов с внедренного кислорода создает ловушки для токовых электронов. В сильном поле пробоя уход электронов превышает их захват и сохраняется проводящее состояние. При больших же токах состояния «ON» и малых напряжениях захват электронов в ловушки превышает их уход, и проводимость исчезает. Однако такой механизм не может объяснить устойчивость состояний «ON» и «OFF» при пороговом характере переходов, а также металлический (неполупроводниковый) характер проводимости состояния «ON». Кроме того, исследования показывают на наличие никелевых фрагментов и мини-каналов, исчезающих при переходе в состояние «OFF», и медленность (до миллисекунд) этого перехода.

Второй механизм имеет термический характер и связан с диффузией атомов Ni к существующим никелевым фрагментам и созданием проводящего канала в сильном поле пробоя и, наоборот, уход никеля (или приход кислорода) при высоких температурах и низких напряжениях при переходе в состояние «OFF». Однако низкое значение коэффициента диффузии в твердом теле не может объяснить малое время ~ 1 нс перехода в проводящее состояние.

В настоящей работе предлагается модель, при которой рассматривается возможность плавления окисла NiO при пробое джоулевым нагревом, и приход никелевых ионов за счет подвижности в жидкости в сильном электрическом поле к никелевым фрагментам, что создает сплошной проводящий канал при одновременном уходе кислорода из канала в виде никелевых вакансий.

Коэффициенты диффузии металлов в расплавленных солях и окислах и коэффициенты самодиффузии на 2-3 порядка больше, чем аналогичные в твердом состоянии при температурах близких к температуре плавления и при температуре $T \geq 200\text{K}$ имеют значения $\sim 10^{-4}$ см²/с. При радиусе канала $3 \div 10$ нм время диффузии составляет $t_{\text{диф}} \sim r^2/D = 10^{-9} \div 10^{-8}$ с. Кроме того при ионизации атомов их смещение за счет подвижности в электрическом поле в СИ/КТ \approx в 10 раз больше, чем диффузионное смещение при том же градиентном расстоянии. Таким образом, время образования канала за счет поступления ионов никеля будет $10^{-10} \div 10^{-9}$ с, что подтверждается экспериментом.

Для подтверждения расплавления NiO требуется проведение численного расчета для температуры и плотности тока с учетом всех факторов пространственного, временного и фазового изменения канала переключения.

Диффузионный механизм перехода в состояние «OFF» более очевиден, т.к на практике он занимает существенно больше времени из-за более низких температур и отсутствия плавления. Но здесь также требуется численный расчет совместного изменения температуры, плотности тока и концентрации атомов и вакансий. Наши исследования основаны на полученных результатах экспериментов по формовке и переключению с памятью в структуре Pt/NiO/Pt, а также проведенных количественных аналитических оценок параметров

структуры по приближенным теоретических моделям. В частности, эти оценки показали, что нагрев структуры в режиме формовки мал, возникает электрический пробой стримерного типа при напряженности поля $\sim 8 \cdot 10^7$ В/м. Далее, чисто радиальная модель отвода тепла показала, что установление температуры происходит за $10^{-10} \div 10^{-9}$ с.

Динамическая модель развития цилиндрического канала показала на плавление окружающего NiO с расширением канала при начальных радиусах более 1–2 нм. Существенное влияние на этот процесс оказывает паразитная емкость электродов даже при значении $5 \cdot 10^{-2}$ пФ. Нагрев канала в состоянии «ON» при токах, близких к пороговым, дает значение температуры в канале 1200 К – 1400 К. Переход в высокоомное состояние осуществляется диффузией в канал никелевых вакансий, имеющих существенно больший коэффициент диффузии по сравнению с диффузией никеля и кислорода. Время диффузионного перекрытия канала при постоянной температуре в канале окружающем NiO 800 К – 1200 К составляет $5,5$ нс \div 15 нс, что существенно выше времени установления температуры.

Потребовалось уточнение полученных результатов с учетом неоднородного распределения температуры по толщине и радиусу структуры, что ведет к неоднородности коэффициентов электропроводности, теплопроводности и диффузии и изменения радиуса и распределения тока по толщине структуры. Для этого необходимо было численно решать систему нелинейных дифференциальных уравнений типа теплопроводности для температуры, электрического поля и концентрации диффузионных носителей с изменением агрегатного состояния. Дополнительной сложностью являлся большой размер счетной области до 1000 нм по сравнению с первоначальным радиусом ~ 1 нм, что требует в двумерном случае иметь более 10^6 пространственных ячеек. Временных интервалов также должно быть $>10^8$ при существенных изменениях температуры за 10^{-11} с при диффузионном времени окисления канала $\sim 10^{-3}$ с.

Дополнительное уменьшение на 2 порядка временного интервала требует условие устойчивости явных методов $\Delta t \leq h^2/4$. Все вместе требовало $\sim 10^{17}$ арифметических операций, что практически неосуществимо. В связи с этим были разработаны и протестированы численные алгоритмы, существенно уменьшающие число операций. Это неравномерный, увеличивающийся по радиусу шаг, что уменьшило число пространственных ячеек на два порядка. Далее был разработан и протестирован абсолютно устойчивый явно- неявный перемежающий метод прохода счетной области, что еще на 2 порядка уменьшило число операций. Кроме того, был использован разный временной шаг при расчете диффузии и температуры с потенциалом с периодическим уточнением температуры, которая определялась с малым временным шагом.

Эти меры позволили впервые, практически в полном объеме провести численное моделирование, хотя время счета одного варианта начальных условий составляло $50 \div 500$ непрерывных часов счета при общем времени счета более полугода. С отработкой алгоритмов и отладкой программ это время было еще больше.

Численное моделирование подтвердило модель расширения проводящего канала после пробоя за счет плавления окружающего NiO и диффузионное окисление канала никелевыми вакансиями при нагреве канала током в состоянии «ON».

Для перехода в проводящее состояние можно отметить следующее:

– Существует минимальный радиус канала $\sim 1,6$ нм и разрядный ток $0,1 \div 0,2$ мА определяемые развитием стримеров при пробое, когда плавление окисла NiO не достигается за счет эффективного отвода тепла. В этом случае расширение канала отсутствует, канал не стабилизирован и может иметь большой разброс параметров. Для стабилизации перехода «SET» необходимо импульсно подавать напряжение, превышающее пороговое.

– Температура в канале при протекании тока существенно превышает температуру плавления NiO и имеет неоднородный по толщине структуры характер, включая электроды.

– Установившееся сечение проводящего канала неоднородно по длине, сужаясь к электродам, и определяется максимальным разрядным током, существенный вклад в который вносит паразитная емкость.

– Для оценки радиуса расширения канала, его сопротивления и температуры предложены приближенные аналитические аппроксимации.

– Повторный пробой из «OFF» в «ON» происходит при меньшем напряжении за счет остатка проводящих частей канала у электродов и уменьшением длины пробиваемого слоя NiO.

Для обратного перехода из состояния «ON» в состояние «OFF» присущи следующие закономерности.

– Сильная неоднородность температуры по радиусу и толщине структуры при протекании тока в состоянии «ON» приводит к еще большей неоднородности коэффициента диффузии. В результате диффузионный процесс, имеющий нелокальный характер, сильно усложняется и не может быть описан упрощенной моделью.

– Пространственное окисление канала имеет вид перетяжки его центральной части при средней температуре канала 900 К–1000 К.

– Время окисления канала составляет порядка миллисекунды при токах, близких к пороговым и резко уменьшается на порядок величины при увеличении тока на 10%.

– Значение критического порогового тока определяется начальным диаметром канала, который в свою очередь определяется примерно таким же значением максимального тока при переходе в «ON» состояние.

– На процесс перехода в «OFF» состояние оказывает влияние условия формирования предельных токов перехода (подача импульса напряжения на структуру, задание тока внешней цепью или подача напряжения через балластное сопротивление). Во всех случаях необходимо обеспечить пороговый ток через структуру при ее нагретом состоянии, когда ее сопротивление увеличивается в $2 \div 2,5$ раза при средней температуре в канале около 1000 К.

Проведенные исследования показали, что тепловые процессы с расплавлением NiO и ростом проводящих фрагментов за счет прихода никеля в канал, а также теплоиндуцированное диффузионное окисление никеля в канале в твердом состоянии является решающим фактором переключения структуры Pt/NiO/Pt.

Предложенные модели электрической формовки и переключения могут быть достаточно универсальными и определять эти процессы в других переключаемых структурах на основе переходных металлов (V, Ti, Nb, Ta и др.).

ПРИЛОЖЕНИЕ 1.

Программа расчета разряда паразитной емкости с радиальным распространением тепла с плавлением окружающего диэлектрика и расширением канала с током при постоянном коэффициенте теплопроводности

```
using System;
using System.Collections.Generic;
using System.Linq;
using System.Text;
using System.IO;

namespace Raschet
{
    class Program17
    {
        static void Main(string[] args)
        {
            double[] time = new double[6] { 0.15, 0.25, 0.35, 0.45, 0.6, 0.65 };
            int[] ii = new int[25] { 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50,
60, 75, 80, 85, 90, 95, 100, 110 };
            int[] jj = new int[16] { 1, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 65, 70, 75, 80, 85, 90, 100,
120, 150 };
            int iTime = 0;
            #region "Начальные значения"
            DateTime StartTime = DateTime.Now;
            DateTime FinishTime = DateTime.Now;
            string format = "dd.MM.yyyy HH:mm:ss";
            FileStream fs1 = new FileStream("Raschet_disertac_17_CIO.txt",
FileMode.Create);
            TextWriter tmp = Console.Out;
```

```

StreamWriter sw1 = new StreamWriter(fs1);
Console.SetOut(sw1);
Console.Write("StartTime:\t");
Console.WriteLine(StartTime.ToString(format));

int i, j, n;
double t = 0, I = 0;
double CE = 0.0083, U0 = 24.18, T1 = 7.43, H1 = 3.086, h = 0.005, dt = (1E-
4) / 2, d = dt / (h * h), U2 = 0, I0 = 1;
const int K = 8, L = 70, M = 306, N = 311;
double[] f = new double[N + 2];
double[] b = new double[N + 2];
double[,] T = new double[M + 2, N + 2];
double[,] C = new double[M + 2, N + 2];
double[,] lambda = new double[M + 2, N + 2];
double[,] sigma = new double[M + 2, N + 2];
double[,] U = new double[M + 2, N + 2];
double[,] Q = new double[M + 2, N + 2];
double[,] alfa = new double[M + 2, N + 2];
double[,] g = new double[M + 1, N + 1];
double[,] F = new double[M + 1, N + 1];

for (i = 1; i <= N + 1; i++)
    f[i] = Math.Pow(1.01, i - 1);
for (i = 1; i <= N; i++)
    b[i] = 50.0 * (f[i] + f[i + 1] - 2.0);
for (j = 1; j <= L; j++)
    for (i = 1; i <= K; i++)
    {
        T[i, j] = T1;
    }

```

```

    C[i, j] = 1.0;
    lambda[i, j] = 1.0;
    sigma[i, j] = Math.Sqrt(1 / (1 + 0.51 * (T[i, j] - 1)));
    U[i, j] = U0 * (j - 0.5) / (double)L;
    alfa[i, j] = H1;
}
for (j = 1; j <= L; j++)
    for (i = K + 1; i <= M; i++)
        {
            T[i, j] = 1.0 + (T1 - 1) * Math.Log(b[M] / b[i]) / Math.Log(b[M] / b[K]);
            C[i, j] = 0.852 + 0.0555 * (T[i, j] - 1.0);
            alfa[i, j] = 0.0;
            lambda[i, j] = Math.Sqrt(0.667 / Math.Sqrt(T[i, j]));
            sigma[i, j] = 1E-5;
            U[i, j] = U0 * (j - 0.5) / (double)L;
        }
for (j = L + 1; j <= N; j++)
    for (i = 1; i <= M; i++)
        {
            T[i, j] = 1.0 + (N - j) * (T[i, L] - 1.0) / (N - L);
            C[i, j] = 0.52 + 0.026 * (T[i, j] - 1.0);
            lambda[i, j] = Math.Sqrt(2.96 + 0.0875 * (T[i, j] - 1.0));
            sigma[i, j] = 3.3 / Math.Pow(T[i, j], 0.5);
            U[i, j] = U0;
            alfa[i, j] = H1;
        }
for (j = 1; j <= N; j++)
    {
        T[0, j] = T[1, j];
        C[0, j] = C[1, j];
    }

```

```

lambda[0, j] = lambda[1, j];
sigma[0, j] = sigma[1, j];
U[0, j] = U[1, j];
}
for (i = 1; i <= M; i++)
{
T[i, 0] = T[i, 1];
C[i, 0] = C[i, 1];
lambda[i, 0] = lambda[i, 1];
sigma[i, 0] = sigma[i, 1];
U[i, 0] = -0.5 * U0 / L;
}
#endregion;

```

#region "Установление начального значения потенциала и объемного выделения тепла"

```

for (n = 1; n <= 1000; n++)
{
for (j = 1; j <= N - 1; j++)
for (i = 1; i <= M - 1; i++)
{
U[i, j] = (U[i, j] * (1.0 - (d * sigma[i, j]) / 1.005 * (sigma[i + 1, j] / (f[i]
* f[i]) + sigma[i, j + 1] / (f[j] * f[j])))) + d * sigma[i, j] * (U[i + 1, j] * (sigma[i + 1, j] /
(1.005 * f[i] * f[i]) + sigma[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + U[i - 1, j] * (sigma[i - 1, j] /
(0.995 * f[i] * f[i]) - sigma[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + U[i, j + 1] * sigma[i, j + 1] /
(1.005 * f[j] * f[j]) + U[i, j - 1] * sigma[i, j - 1] / (0.995 * f[j] * f[j])))) / (1.0 + d *
sigma[i, j] * (sigma[i - 1, j] / (0.995 * f[i] * f[i]) + sigma[i, j - 1] / (0.995 * f[j] *
f[j]))));
if (alfa[i, j] < H1)
{

```

```

        U[i, j] = U[i - 1, j];
    }
}
}
for (j = 1; j <= N - 1; j++)
{
    U[0, j] = U[1, j];
    U[M, j] = U[M - 1, j];
}

for (j = 1; j <= N - 1; j++)
    for (i = 1; i <= M - 1; i++)
        Q[i, j] = sigma[i, j] * sigma[i, j] / 4.0 * ((Math.Pow(U[i + 1, j] - U[i - 1,
j], 2.0)) / (f[i] * f[i]) + (Math.Pow(U[i, j + 1] - U[i, j - 1], 2.0)) / (f[j] * f[j]));
    I = 0;
    for (i = 1; i <= M - 1; i++)
        I += Math.PI * h * f[i] * b[i] * U[i, 1] * 4 * sigma[i, 1] * sigma[i, 1];
#endregion;
do
{
    #region "Сдвиг во времени. Вычисление температуры"
    t += dt;
    U2 = (I - I0) * dt / (CE / 2);
    for (i = 0; i <= M; i++)
        for (j = 0; j <= N; j++)
            {
                U[i, j] = U[i, j] * (1.0 - U2 / U0);
            }
    U0 = U0 - U2;
    for (j = 1; j <= L; j++)

```

```

for (i = 1; i <= M - 1; i++)
{
    T[i, j] = (T[i, j] * (1.0 - d * lambda[i, j] / (1.005 * C[i, j]) * (lambda[i
+ 1, j] / (f[i] * f[i]) + lambda[i, j + 1] / (f[j] * f[j]))) + d * lambda[i, j] / C[i, j] * (T[i +
1, j] * (lambda[i + 1, j] / (1.005 * f[i] * f[i]) + lambda[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + T[i -
1, j] * (lambda[i - 1, j] / (0.995 * f[i] * f[i]) - lambda[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + T[i, j +
1] * lambda[i, j + 1] / (1.005 * f[j] * f[j]) + T[i, j - 1] * lambda[i, j - 1] / (0.995 * f[j]
* f[j]) + Q[i, j] / lambda[i, j])) / (1.0 + d * lambda[i, j] / C[i, j] * (lambda[i - 1, j] /
(0.995 * f[i] * f[i]) + lambda[i, j - 1] / (0.995 * f[j] * f[j]))));
    if (T[i, j] < T1 && alfa[i, j] < 0.1)
    {
        C[i, j] = 0.852 + 0.0555 * (T[i, j] - 1.0);
        lambda[i, j] = Math.Sqrt(0.667 / Math.Sqrt(T[i, j]));
    }
    if (T[i, j] > T1 && alfa[i, j] < H1)
    {
        alfa[i, j] = alfa[i, j] + C[i, j] * (T[i, j] - T1);
        C[i, j] = (1.0 - alfa[i, j] / H1) * 1.209 + alfa[i, j] / H1;
        T[i, j] = T1;
        lambda[i, j] = Math.Sqrt((1.0 - alfa[i, j] / H1) * 0.245 + alfa[i, j] /
H1);
        sigma[i, j] = Math.Sqrt(1E-8 + (alfa[i, j] / H1) / 4.28);
    }
    if (alfa[i, j] >= H1)
    {
        lambda[i, j] = 1.0;
        C[i, j] = 1.0;
        sigma[i, j] = Math.Sqrt(1 / (1 + 0.51 * (T[i, j] - 1)));
        alfa[i, j] = H1;
    }
}

```

```

    }
    for (j = L + 1; j <= N - 1; j++)
        for (i = 1; i <= M - 1; i++)
            {
                T[i, j] = (T[i, j] * (1.0 - d * lambda[i, j] / (1.005 * C[i, j]) * (lambda[i
+ 1, j] / (f[i] * f[i]) + lambda[i, j + 1] / (f[j] * f[j]))) + d * lambda[i, j] / C[i, j] * (T[i +
1, j] * (lambda[i + 1, j] / (1.005 * f[i] * f[i]) + lambda[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + T[i -
1, j] * (lambda[i - 1, j] / (0.995 * f[i] * f[i]) - lambda[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + T[i, j +
1] * lambda[i, j + 1] / (1.005 * f[j] * f[j]) + T[i, j - 1] * lambda[i, j - 1] / (0.995 * f[j]
* f[j]) + Q[i, j] / lambda[i, j])) / (1.0 + d * lambda[i, j] / C[i, j] * (lambda[i - 1, j] /
(0.995 * f[i] * f[i]) + lambda[i, j - 1] / (0.995 * f[j] * f[j]))));
                lambda[i, j] = Math.Sqrt(2.96 + 0.0875 * (T[i, j] - 1.0));
                C[i, j] = 0.52 + 0.026 * (T[i, j] - 1.0);
                sigma[i, j] = 3.3 / Math.Sqrt(T[i, j]);
            }
    for (j = 1; j <= N - 1; j++)
        {
            T[0, j] = T[1, j];
            C[0, j] = C[1, j];
            lambda[0, j] = lambda[1, j];
            sigma[0, j] = sigma[1, j];
        }
    for (i = 1; i <= M - 1; i++)
        {
            T[i, 0] = T[i, 1];
            C[i, 0] = C[i, 1];
            lambda[i, 0] = lambda[i, 1];
            sigma[i, 0] = sigma[i, 1];
        }
    #endregion;

```

#region "Уточнение потенциала в ячейках и объемного выделения
тепла за время dt"

```
for (n = 1; n <= 500; n++)
```

```
{
```

```
for (j = 1; j <= N - 1; j++)
```

```
for (i = 1; i <= M - 1; i++)
```

```
{
```

```
U[i, j] = (U[i, j] * (1.0 - (d * sigma[i, j]) / 1.005 * (sigma[i + 1, j] /  
(f[i] * f[i]) + sigma[i, j + 1] / (f[j] * f[j]))) + d * sigma[i, j] * (U[i + 1, j] * (sigma[i +  
1, j] / (1.005 * f[i] * f[i]) + sigma[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + U[i - 1, j] * (sigma[i - 1, j]  
/ (0.995 * f[i] * f[i]) - sigma[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + U[i, j + 1] * sigma[i, j + 1] /  
(1.005 * f[j] * f[j]) + U[i, j - 1] * sigma[i, j - 1] / (0.995 * f[j] * f[j]))) / (1.0 + d *  
sigma[i, j] * (sigma[i - 1, j] / (0.995 * f[i] * f[i]) + sigma[i, j - 1] / (0.995 * f[j] *  
f[j]))));
```

```
if (alfa[i, j] < H1)
```

```
{
```

```
U[i, j] = U[i - 1, j];
```

```
}
```

```
}
```

```
}
```

```
for (j = 1; j <= N - 1; j++)
```

```
{
```

```
U[0, j] = U[1, j];
```

```
U[M, j] = U[M - 1, j];
```

```
}
```

```
for (j = 1; j <= N - 1; j++)
```

```
for (i = 1; i <= M - 1; i++)
```

```

        Q[i, j] = sigma[i, j] * sigma[i, j] / 4.0 * (Math.Pow((U[i + 1, j] - U[i -
1, j]), 2.0) / (f[i] * f[i]) + Math.Pow((U[i, j + 1] - U[i, j - 1]), 2.0) / (f[j] * f[j]));
    I = 0;
    for (i = 1; i <= M; i++)
        I += Math.PI * h * f[i] * b[i] * U[i, 1] * 4.0 * sigma[i, 1] * sigma[i, 1];
#endregion;
if (t >= time[iTime])
{
    iTime++;
    FinishTime = DateTime.Now;
    Console.WriteLine("\nFinishTime:\t");
    Console.WriteLine(FinishTime.ToString(format));
    Console.WriteLine("t={0:f6}\tdt={1:f6}", t, dt);
    Console.WriteLine("U0={0:f6}\t\t\t", U0);
    Console.WriteLine("K={0:f1}\t\t\t", K);
    for (j = 1; j <= N - 1; j++)
    {
        F[0, j] = 0;
        for (i = 1; i <= M - 1; i++)
        {
            g[i, j] = sigma[i, j] * sigma[i, j] * (U[i, j + 1] - U[i, j - 1]) / (2.0 *
f[j] * h);

            F[i, j] = F[i - 1, j] + 2.0 * Math.PI * b[i] * f[i] * g[i, j] * h * h;
        }
    }
    for (int ind = 0; ind < ii.Length; ind++)
        for (int jnd = 0; jnd < jj.Length; jnd++)
        {
            Console.WriteLine("T[{0:D},{1:D}]={2:F6}\t",    ii[ind],    jj[jnd],
T[ii[ind], jj[jnd]]);

```

```

        Console.WriteLine("F[{0:D},{1:D}]={2:F6}\t", ii[ind], jj[jnd], F[ii[ind],
jj[jnd]]);
        Console.WriteLine("U[{0:D},{1:D}]={2:F6}\t",    ii[ind],    jj[jnd],
U[ii[ind], jj[jnd]]);
        Console.WriteLine("sigma[{0:D},{1:D}]={2:F6}", ii[ind], jj[jnd],
sigma[ii[ind], jj[jnd]]);
    }
}
}
while (t <= 1.0 + dt);
#region "Вывод"
Console.SetOut(tmp);
sw1.Close();
#endregion
}
}
}

```

ПРИЛОЖЕНИЕ 2.

Программа расчета диффузии никелевых вакансий в цилиндрической геометрии при постоянной и однородной температуре

```
using System;
using System.Collections.Generic;
using System.Linq;
using System.Text;
using System.IO;

namespace program22
{
    class Program22
    {
        static void Main(string[] args)
        {
            double[] time = new double[8] { 0.05, 0.1, 0.15, 0.2, 0.25, 0.5, 0.75, 1.0 };
            int[] ii = new int[23] { 1, 2, 4, 6, 8, 10, 15, 20, 22, 25, 27, 30, 33, 35, 40, 45,
50, 60, 75, 80, 85, 90, 100 };
            int[] jj = new int[9] { 1, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 65, 70 };
            #region "Начальные значения"
            DateTime StartTime = DateTime.Now;
            DateTime FinishTime = DateTime.Now;
            string format = "dd.MM.yyyy HH:mm:ss";
            FileStream fs1 = new FileStream("Raschet_disertac_22_3.txt",
FileMode.Create);
            TextWriter tmp = Console.Out;
            StreamWriter sw1 = new StreamWriter(fs1);
            Console.SetOut(sw1);
            Console.Write("StartTime:\t");
```

```

Console.WriteLine(StartTime.ToString(format));

double t = 0, I = 0, t1 = 0;
double S;
double U0 = 95.0, h = 0.005, dt = (1E-4), d = dt / (h * h), U2 = 0, RK = 4.95,
R0 = 94.0, U1 = U0 / 2 / (1 + R0 / RK), dt1 = 0.004, d1 = dt1 / (h * h);
const int L = 70, M = 306, N = 311, K0 = 41;
int[] K = new int[N + 1];
double[] f = new double[N + 2];
double[] b = new double[N + 2];
double[,] T = new double[M + 2, N + 2];
double[,] C = new double[M + 2, N + 2];
double[,] lambda = new double[M + 2, N + 2];
double[,] sigma = new double[M + 2, N + 2];
double[,] U = new double[M + 2, N + 2];
double[,] D = new double[M + 2, N + 2];
double[,] nk = new double[M + 2, L + 2];
double[,] A = new double[M + 1, L + 2];
double[,] dn = new double[M + 1, L + 2];
double[,] Q = new double[M + 2, N + 2];

for (int j = 1; j <= L; j++)
{
    S = K0 * (1.0 - 0.2 * j * j / L / L);
    K[j] = (int)S;
}
for (int i = 1; i <= N + 1; i++)
    f[i] = Math.Pow(1.01, i - 1);
for (int i = 1; i <= N; i++)
    b[i] = 50.0 * (f[i] + f[i + 1] - 2.0);

```

```

for (int j = 0; j <= L; j++)
    for (int i = 0; i <= K[j]; i++)
        {
            T[i, j] = 1.0;
            C[i, j] = 1.0;
            lambda[i, j] = 1.0;
            sigma[i, j] = 1.0;
            U[i, j] = U1 * (j - 0.5) / L;
            nk[i, j] = 0;
            A[i, j] = 0;
            dn[i, j] = 0;
        }
for (int j = 0; j <= L; j++)
    for (int i = K[j] + 1; i <= M; i++)
        {
            T[i, j] = 1.0;
            C[i, j] = 0.852;
            lambda[i, j] = Math.Sqrt(0.667);
            sigma[i, j] = 1E-4;
            nk[i, j] = 1.0;
            dn[i, j] = 0;
            A[i, j] = 1.0;
            U[i, j] = U1 * (j - 0.5) / L;
        }
for (int j = L + 1; j <= N; j++)
    for (int i = 0; i <= M; i++)
        {
            T[i, j] = 1.0;
            C[i, j] = 0.52;
            lambda[i, j] = Math.Sqrt(2.96);

```

```

        sigma[i, j] = 3.3;
        U[i, j] = U1;
    }
for (int j = 1; j <= N; j++)
{
    T[0, j] = T[1, j];
    C[0, j] = C[1, j];
    lambda[0, j] = lambda[1, j];
    sigma[0, j] = sigma[1, j];
    U[0, j] = U[1, j];
}
for (int j = 1; j <= L; j++)
{
    dn[0, j] = dn[1, j];
}
for (int i = 0; i <= M; i++)
{
    T[i, 0] = T[i, 1];
    C[i, 0] = C[i, 1];
    lambda[i, 0] = lambda[i, 1];
    sigma[i, 0] = sigma[i, 1];
    dn[i, 0] = dn[i, 1];
    U[i, 0] = -0.5 * U1 / L;
}
#endregion;

#region "Установка начального значения потенциала"
for (int n = 1; n <= 20; n++)
{
    for (int j = 1; j <= N - 1; j++)

```

```

for (int i = 1; i <= M - 1; i++)
{
    U[i, j] = (U[i, j] * (1.0 - (d * sigma[i, j]) / 1.005 * (sigma[i + 1, j] / (f[i]
* f[i]) + sigma[i, j + 1] / (f[j] * f[j]))) + d * sigma[i, j] * (U[i + 1, j] * (sigma[i + 1, j] /
(1.005 * f[i] * f[i]) + sigma[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + U[i - 1, j] * (sigma[i - 1, j] /
(0.995 * f[i] * f[i]) - sigma[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + U[i, j + 1] * sigma[i, j + 1] /
(1.005 * f[j] * f[j]) + U[i, j - 1] * sigma[i, j - 1] / (0.995 * f[j] * f[j]))) / (1.0 + d *
sigma[i, j] * (sigma[i - 1, j] / (0.995 * f[i] * f[i]) + sigma[i, j - 1] / (0.995 * f[j] *
f[j]))));
}
for (int j = 1; j <= N - 1; j++)
{
    U[0, j] = U[1, j];
    U[M, j] = U[M - 1, j];
}
}
for (int j = 1; j <= N - 1; j++)
    for (int i = 1; i <= M - 1; i++)
        Q[i, j] = sigma[i, j] * sigma[i, j] / 4.0 * ((Math.Pow(U[i + 1, j] - U[i - 1,
j], 2.0)) / (f[i] * f[i]) + (Math.Pow(U[i, j + 1] - U[i, j - 1], 2.0)) / (f[j] * f[j]));
I = 0;
for (int i = 1; i <= M - 1; i++)
    I += (Math.PI * h * f[i] * b[i] * (U[i, 31] - U[i, 29]) * sigma[i, 30] *
sigma[i, 30]);
#endregion;
do
{
    do
    {
        #region "Сдвиг во времени. Вычисление температуры"

```

```

t += dt;
RK = (2*U1) / I;
U2 = U0 / 2 / (1 + R0 / RK);
for (int i = 0; i <= M; i++)
    for (int j = 0; j <= N; j++)
        {
            U[i, j] = U[i, j] * U2 / U1;
        }
U1 = U2;
for (int j = 1; j <= N - 1; j++)
    for (int i = 1; i <= M - 1; i++)
        {
            T[i, j] = (T[i, j] * (1.0 - d * lambda[i, j] / (1.005 * C[i, j]) *
(lambda[i + 1, j] / (f[i] * f[i]) + lambda[i, j + 1] / (f[j] * f[j]))) + d * lambda[i, j] / C[i,
j] * (T[i + 1, j] * (lambda[i + 1, j] / (1.005 * f[i] * f[i]) + lambda[i, j] / (2.0 * f[i] *
b[i])) + T[i - 1, j] * (lambda[i - 1, j] / (0.995 * f[i] * f[i]) - lambda[i, j] / (2.0 * f[i] *
b[i])) + T[i, j + 1] * lambda[i, j + 1] / (1.005 * f[j] * f[j]) + T[i, j - 1] * lambda[i, j - 1]
/ (0.995 * f[j] * f[j]) + Q[i, j] / lambda[i, j])) / (1.0 + d * lambda[i, j] / C[i, j] *
(lambda[i - 1, j] / (0.995 * f[i] * f[i]) + lambda[i, j - 1] / (0.995 * f[j] * f[j]))));
        }
    for (int j = 1; j <= N - 1; j++)
        {
            T[0, j] = T[1, j];
        }
    for (int i = 0; i <= M - 1; i++)
        {
            T[i, 0] = T[i, 1];
        }
    for (int j = 0; j <= L; j++)
        for (int i = 0; i <= K[j]; i++)

```

```

sigma[i, j] = Math.Sqrt(1 / (1 + 0.51 * (T[i, j] - 1)));

for (int j = 0; j <= L; j++)
    for (int i = K[j] + 1; i <= M; i++)
    {

        C[i, j] = 0.852 + 0.0555 * (T[i, j] - 1);
        lambda[i, j] = Math.Sqrt(0.667 / Math.Sqrt(T[i, j]));
    }

for (int j = L + 1; j <= N; j++)
    for (int i = 0; i <= M; i++)
    {

        C[i, j] = 0.52 + 0.026 * (T[i, j] - 1);
        lambda[i, j] = Math.Sqrt(2.96 + 0.0875 * (T[i, j] - 1));
        sigma[i, j] = 3.3 / Math.Pow(T[i, j], 0.5);
    }

#endregion;

#region "Уточнение потенциала в ячейках и объемного выделения
тепла за время dt"

for (int n = 1; n <= 10; n++)
    {
        for (int j = 1; j <= N - 1; j++)
            for (int i = 1; i <= M - 1; i++)
                {
                    U[i, j] = (U[i, j] * (1.0 - (d * sigma[i, j]) / 1.005 * (sigma[i + 1, j]
/ (f[i] * f[i]) + sigma[i, j + 1] / (f[j] * f[j]))) + d * sigma[i, j] * (U[i + 1, j] * (sigma[i +
1, j] / (1.005 * f[i] * f[i]) + sigma[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + U[i - 1, j] * (sigma[i - 1, j]
/ (0.995 * f[i] * f[i]) - sigma[i, j] / (2.0 * f[i] * b[i])) + U[i, j + 1] * sigma[i, j + 1] /
(1.005 * f[j] * f[j]) + U[i, j - 1] * sigma[i, j - 1] / (0.995 * f[j] * f[j]))) / (1.0 + d *

```

```

sigma[i, j] * (sigma[i - 1, j] / (0.995 * f[i] * f[i]) + sigma[i, j - 1] / (0.995 * f[j] *
f[j])));
    }
}
for (int j = 1; j <= N - 1; j++)
{
    U[0, j] = U[1, j];
    U[M, j] = U[M - 1, j];
}
for (int j = 1; j <= N - 1; j++)
    for (int i = 1; i <= M - 1; i++)
        Q[i, j] = sigma[i, j] * sigma[i, j] / 4.0 * ((Math.Pow(U[i + 1, j] - U[i
- 1, j], 2.0)) / (f[i] * f[i]) + (Math.Pow(U[i, j + 1] - U[i, j - 1], 2.0)) / (f[j] * f[j]));
    I = 0;
    for (int i = 1; i <= M; i++)
        I += (Math.PI * h * f[i] * b[i] * (U[i, 31] - U[i, 29]) * sigma[i, 30] *
sigma[i, 30]);
    #endregion;
}
while (t <= 1.0 + dt);
t = 0;
for (int j = 0; j <= L; j++)
    for (int i = 0; i <= 2 * K0; i++)
        D[i, j] = 0.474 * Math.Exp(-23.65 / T[i, j]);
for (int l = 1; l <= 6000000; l++)
{
    t1 += dt1;
    for (int j = 1; j <= L - 1; j++)
        for (int i = 1; i <= 60; i++)
            {

```

```

        dn[i, j] = d1 * D[i, j] * (nk[i + 1, j] * (D[i + 1, j] / (1.005 * f[i] *
f[i]) + D[i, j] / (2 * b[i] * f[i])) + nk[i - 1, j] * (D[i - 1, j] / (0.995 * f[i] * f[i]) - D[i, j] /
(2 * b[i] * f[i])) + nk[i, j + 1] * D[i, j + 1] / (1.005 * f[j] * f[j]) + nk[i, j - 1] * D[i, j -
1] / (0.995 * f[j] * f[j]) - nk[i, j] * (D[i + 1, j] / (1.005 * f[i] * f[i]) + D[i - 1, j] /
(0.995 * f[i] * f[i]) + D[i, j + 1] / (1.005 * f[j] * f[j]) + D[i, j - 1] / (0.995 * f[j] *
f[j]))));

```

```

        if (A[i, j] < 1.0)
        {
            A[i, j] = A[i, j] + dn[i, j];
        }
        else
        {
            nk[i, j] = nk[i, j] + dn[i, j];
            sigma[i, j] = 1E-4;
            K[j] = K[j] - 1;
            if (K[j] < 0)
            {
                K[j] = 0;
            }
        }
    }
    for (int i = 1; i <= 60; i++)
    {
        nk[i, 0] = nk[i, 1];
        nk[i, L] = nk[i, L - 1];
    }
}
Console.WriteLine("U1={0:f6}\t\t\t", U1);
Console.WriteLine("t1={0:f1}\t\t\t", t1);
Console.WriteLine("I={0:f6}\t\t\t", I);

```

```

for (int ind = 0; ind < ii.Length; ind++)
    for (int jnd = 0; jnd < jj.Length; jnd++)
        {
            Console.WriteLine("T[{0:D},{1:D}]={2:F6}\t", ii[ind], jj[jnd], T[ii[ind],
jj[jnd]]);

            Console.WriteLine("A[{0:D},{1:D}]={2:F6}\t", ii[ind], jj[jnd], A[ii[ind],
jj[jnd]]);

            Console.WriteLine("dn[{0:D},{1:D}]={2:F6}\t", ii[ind], jj[jnd], dn[ii[ind],
jj[jnd]]);

            Console.WriteLine("nk[{0:D},{1:D}]={2:F6}\t", ii[ind], jj[jnd], nk[ii[ind],
jj[jnd]]);

            Console.WriteLine("sigma[{0:D},{1:D}]={2:F6}", ii[ind], jj[jnd],
sigma[ii[ind], jj[jnd]]);
        }
    }
while (t1 < 5000000);
#region "Вывод"
Console.SetOut(tmp);
sw1.Close();
#endregion
}
}
}

```

ПРИЛОЖЕНИЕ 3.

Тестирование экономичных итерационных схем для двумерного уравнения типа Пуассона

Итерационные методы решения уравнения Пуассона $\nabla^2 U + f = 0$ широко применяются в задачах стационарного распределения потенциала, температуры, концентрации и др. Выбор наиболее оптимального числа арифметических операций метода важны в нестационарных типовых задачах с объемным выделением джоулевого тепла при прохождении тока с электропроводностью, зависящей от температуры. В этом случае необходимо решать уравнение Пуассона для электрического потенциала на каждом временном шаге решения уравнения теплопроводности. При этом чаще всего требуется решение двумерных задач.

Для таких задач предпочтительными являются метод переменных направлений и метод верхней релаксации, которые относятся к экономичным схемам, обеспечивающим минимальное количество итераций при заданной погрешности [130]. Реже используются более сложные в исполнении итерационная схема с чебышевскими параметрами и попеременно-треугольный метод.

Между тем, для решения стационарных задач можно использовать решения нестационарного уравнения теплопроводности $\frac{\partial U}{\partial t} = \nabla^2 U + f$, которые асимптотически при не зависящих от времени «f» и граничных условий при $t \rightarrow \infty$ переходят в стационарное решение. При этом можно использовать экономичные абсолютно устойчивые схемы с большим временным шагом даже при их недостаточной аппроксимации во времени, которая не имеет значения в стационарной задаче. К ним можно отнести явный трехслойный метод «ромб» [131] и неявно-явный «перемежающий». В настоящем приложении проведено тестирование этих методов вместе с методами верхней релаксации и переменных направлений, на примере

стационарного распределения температуры в теле прямоугольного (квадратного) сечения с однородной объемной мощностью выделения тепла и нулевыми граничными и начальными условиями. Данная задача является типовой двумерной задачей в практических приложениях и имеет аналитическое решение.

1. Исходные уравнения. Аналитическое решение

Расчетная область представлена на рисунке ПЗ.1

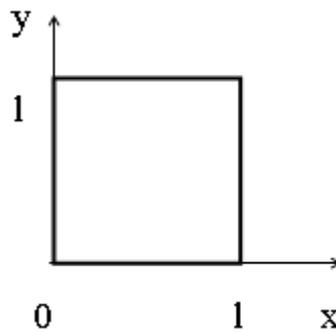


Рисунок ПЗ.1 – схема расчетной области.

Уравнение для температуры имеет вид:

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{Q}{\lambda} = 0, \quad (\text{ПЗ.1})$$

где Q – мощность объемного выделения тепла, λ – коэффициент теплопроводности.

Заменой переменных $x' = x/l$, $y' = y/l$, $T' = \frac{\lambda T}{l^2 Q}$ уравнение (ПЗ.1) при

опускании штрихов преобразуется:

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + 1 = 0; \quad 0 \leq x \leq 1; \quad 0 \leq y \leq 1 \quad (\text{ПЗ.2})$$

Граничные и начальные условия: $T = 0$.

Аналитическое решение такой задачи имеет вид:

$$T(x, y) = \frac{0,25 - (x - 0,5)^2}{2} - \frac{4}{\pi^3} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n \cos[(2n+1) \cdot \pi(x-0,5)] \cosh[(2n+1) \cdot \pi(y-0,5)]}{(2n+1)^3 \cosh\left[\frac{(2n+1)\pi}{2}\right]} \quad (\text{ПЗ.3})$$

Для численного решения в уравнение (ПЗ.2) введем временной член, который должен стремиться к нулю при $t \rightarrow \infty$

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + 1 \quad (\text{ПЗ.4})$$

Дискретизация переменных в (ПЗ.4) в каждом методе отличается.

2. Метод верхней релаксации

Сначала по методу Зейделя с асимметричным выражением второй производной находится промежуточное значение $\tilde{T}_{i,j}$:

$$\frac{\tilde{T}_{i,j}^{n+1} - T_{i,j}^n}{\tau} = \frac{T_{i-1,j}^{n+1} - \tilde{T}_{i,j}^{n+1} - T_{i,j}^n + T_{i+1,j}^n}{h^2} + \frac{T_{i,j-1}^{n+1} - \tilde{T}_{i,j}^{n+1} - T_{i,j}^n + T_{i,j+1}^n}{h^2} + 1, \quad (\text{ПЗ.5})$$

здесь $h = \frac{1}{N}$ – шаг по координате, τ – шаг во времени.

В методе Зейделя значение $\tilde{T}_{i,j}$ является окончательным, решение (ПЗ.5) является абсолютно устойчивым при любых « τ », но принимается $\tau = h^2/2$.

Тогда получим:

$$\tilde{T}_{i,j}^{n+1} = \frac{1}{4} (T_{i-1,j}^{n+1} + T_{i+1,j}^n + T_{i,j-1}^{n+1} + T_{i,j+1}^n + h^2) \quad (\text{ПЗ.6})$$

Далее для ускорения счета вводят параметр релаксации $1 \leq \omega \leq 2$ для учета с обратным знаком части старого значения

$$T_{i,j}^{n+1} = (1 - \omega)T_{i,j}^n + \omega\tilde{T}_{i,j}^{n+1} \quad (\text{ПЗ.7})$$

При прохождении сетки последовательно слева - направо, снизу - вверх уравнения (ПЗ.6 – ПЗ.7) решаются явно.

Система (ПЗ.6 – ПЗ.7) устойчива при $\omega \leq 2$. Оптимальное $\omega \approx \frac{2}{1 + \pi h}$ [130].

На одну итерацию по времени приходится $\sim 8(N-1)^2$ арифметических операций. Число итераций для достижения погрешности ε при оптимальном ω составляет $\frac{2}{\pi h} \cdot \ln \frac{1}{\varepsilon}$ [130](ПЗ.1).

3. Метод переменных направлений

В методе переменных направлений на нечетных интервалах времени вторая производная на одной координате берется в предыдущем временном шаге, а по второй координате – в последующем временном шаге. На четных интервалах времени – наоборот, по первой координате производная берется в будущем временном слое, а по второй координате – в уже вычисленном временном слое. Получаем абсолютно устойчивую схему при любых « τ ».

$$\frac{T_{i,j}^{n+1} - T_{i,j}^n}{\tau} = \frac{T_{i-1,j}^{n+1} - 2T_{i,j}^{n+1} + T_{i+1,j}^{n+1}}{h^2} + \frac{T_{i,j-1}^n - 2T_{i,j}^n + T_{i,j+1}^n}{h^2} + 1 \quad (\text{ПЗ.8})$$

$$\frac{T_{i,j}^{n+2} - T_{i,j}^{n+1}}{\tau} = \frac{T_{i-1,j}^{n+1} - 2T_{i,j}^{n+1} + T_{i+1,j}^{n+1}}{h^2} + \frac{T_{i,j-1}^{n+2} - 2T_{i,j}^{n+2} + T_{i,j+1}^{n+2}}{h^2} + 1 \quad (\text{ПЗ.9})$$

Обозначая $a = \frac{\tau}{h^2}$, $b = 1 + 2a$ и перенося неизвестные в левую часть,

получим:

$$-aT_{i-1,j}^{n+1} + bT_{i,j}^{n+1} - aT_{i+1,j}^{n+1} = T_{i,j}^n(1 - 2a) + a(T_{i,j-1}^n + T_{i,j+1}^n + h^2) \equiv g_{i,j} \quad (\text{ПЗ.10})$$

$$-aT_{i,j-1}^{n+2} + bT_{i,j}^{n+2} - aT_{i,j+1}^{n+2} = T_{i,j}^{n+1}(1 - 2a) + a(T_{i-1,j}^{n+1} + T_{i+1,j}^{n+1} + h^2) \equiv g_{i,j} \quad (\text{ПЗ.11})$$

Система уравнений (ПЗ.10) для всех « i » при фиксированном « j » как и система (ПЗ.11) для всех « j » при фиксированном « i » решается методом одномерной прогонки. Так для системы (ПЗ.10) сначала для всех « i » снизу вверх определяются коэффициенты α_i, β_i :

$$\alpha_0 = 0; \beta_0 = 0; \alpha_i = \frac{\alpha}{b - a \cdot \alpha_{i-1}}; \beta_i = \frac{1}{a} \alpha_i (g_{i,j} + a\beta_{i-1}) \quad (\text{ПЗ.12})$$

Затем последовательно сверху вниз определяем температуру

$$T_{N-1,j} = \beta_{N-1}; T_{i,j} = \alpha_i T_{i+1,j} + \beta_i \quad (\text{ПЗ.13})$$

Эти операции выполняются построчно для всех «j».

Аналогично на следующем временном шаге решается система уравнений (ПЗ.11) при тех же «α».

$$\beta_j = \frac{1}{a} \alpha_j (g_{i,j} + a\beta_{j-1}) \quad (\text{ПЗ.14})$$

$$T_{i,N-1} = \beta_{N-1}; T_{i,j} = \alpha_i T_{i,j+1} + \beta_j \quad (\text{ПЗ.15})$$

Число арифметических операций на 2 временных шага $\sim 28(N-1)^2$.

Оптимальное $\tau \approx \frac{h}{2\pi}$, при этом число итераций, включающих 2 временных

шага для достижения погрешности ε равно $\frac{2}{\pi h} \cdot \ln \frac{1}{\varepsilon}$ [ПЗ.1].

4. Трехслойный явный метод «ромб»

Схема метода следующая:

$$\frac{T_{i,j}^{n+2} - T_{i,j}^n}{2\tau} = \frac{T_{i-1,j}^{n+1} - T_{i,j}^{n+2} - T_{i,j}^n + T_{i+1,j}^{n+1}}{h^2} + \frac{T_{i,j-1}^{n+1} - T_{i,j}^{n+2} - T_{i,j}^n + T_{i,j+1}^{n+1}}{h^2} + 1 \quad (\text{ПЗ.16})$$

Выражая явно $T_{i,j}^{n+2}$ получим:

$$T_{i,j}^{n+2} \left(1 + \frac{4\tau}{h^2}\right) = T_{i,j}^n \left(1 - \frac{4\tau}{h^2}\right) + \frac{2\tau}{h^2} (T_{i-1,j}^{n+1} + T_{i+1,j}^{n+1} + T_{i,j-1}^{n+1} + T_{i,j+1}^{n+1} + h^2) \quad (\text{ПЗ.17})$$

Схема абсолютно устойчива, но требует запоминания 2^x слоев и предварительного определения $T_{i,j}$ на первом интервале времени, которые

обычно считают по (ПЗ.17) при $\tau = \frac{h^2}{4}$.

Число арифметических операций на итерацию из двух временных шагов (четный и нечетный) составляет $\sim 16(N-1)^2$.

5. Перемежающий метод

Схема аналогична (ПЗ.5), но на следующем временном интервале изменяется обход счетной области.

$$T_{i,j}^{n+1} \left(1 + \frac{2\tau}{h^2}\right) = T_{i,j}^n \left(1 - \frac{2\tau}{h^2}\right) + \frac{\tau}{h^2} (T_{i-1,j}^{n+1} + T_{i+1,j}^n + T_{i,j-1}^{n+1} + T_{i,j+1}^n + h^2) \quad (\text{ПЗ.18})$$

$$T_{i,j}^{n+2} \left(1 + \frac{2\tau}{h^2}\right) = T_{i,j}^{n+1} \left(1 - \frac{2\tau}{h^2}\right) + \frac{\tau}{h^2} (T_{i-1,j}^n + T_{i+1,j}^{n+1} + T_{i,j-1}^n + T_{i,j+1}^{n+1} + h^2) \quad (\text{ПЗ.19})$$

Уравнение (ПЗ18.) решается явно на нечетных временных интервалах проходом счетной области слева-направо, снизу-вверх, а уравнение (ПЗ.19) решается явно на четных временных интервалах справа-налево, сверху-вниз.

Смена направления обхода счетной области компенсирует пространственные погрешности аппроксимации. Число арифметических операций на итерацию из двух временных шагов составляет $\sim 16(N-1)^2$, т.е. как и в трехслойном методе «ромб».

6. Результаты вычислений

В таблицах ПЗ.1÷ПЗ.3 приведены значения максимальной по счетной области, наблюдаемой в ее центре относительной погрешности вычислений ε для разных методов при различном временном шаге и числе итераций. Погрешность определялась относительно аналитического уравнения (ПЗ.3). Число членов ряда в (ПЗ.3) определялось относительной погрешностью его вычисления $< 1 \cdot 10^{-7}$.

Таблица ПЗ. 0.1 – Погрешность вычислений ε . $h = 0,05$. Вверху – число итераций 20, внизу – 50.

	$\tau=0,1h$	$\tau=0,2h$	$\tau=0,3h$	$\tau=0,4h$	$\tau=0,6h$
Переменных направлений	$2,4 \cdot 10^{-2}$	$2,6 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-3}$
	$2,4 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-3}$

Ромб	$1,0 \cdot 10^{-2}$	$5,9 \cdot 10^{-2}$	0,18	0,29	0,46
	$2,2 \cdot 10^{-3}$	$2,5 \cdot 10^{-3}$	$1,0 \cdot 10^{-2}$	$4,0 \cdot 10^{-2}$	0,13
Перебежающий	$4,1 \cdot 10^{-2}$	$1,6 \cdot 10^{-2}$	$2,0 \cdot 10^{-2}$	$2,9 \cdot 10^{-2}$	$6,1 \cdot 10^{-2}$
	$2,4 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$2,4 \cdot 10^{-3}$	$3,6 \cdot 10^{-3}$
Верхней релаксации	$7,3 \cdot 10^{-2}$				
	$2,5 \cdot 10^{-3}$				

Таблица ПЗ.0.2 – Погрешность вычислений ε , $h = 0,01$. Вверху число итераций 100, внизу – 200.

	$\tau=0,1h$	$\tau=0,2h$	$\tau=0,3h$	$\tau=0,4h$	$\tau=0,6h$
Переменных направлений	$2,2 \cdot 10^{-2}$	$5,0 \cdot 10^{-4}$	$9,7 \cdot 10^{-5}$	$9,0 \cdot 10^{-5}$	$9,0 \cdot 10^{-5}$
	$5,0 \cdot 10^{-4}$	$9,0 \cdot 10^{-5}$	$9,0 \cdot 10^{-5}$	$9,0 \cdot 10^{-5}$	$9,0 \cdot 10^{-5}$
Ромб	$1,3 \cdot 10^{-2}$	$5,5 \cdot 10^{-2}$	0,18	0,29	0,46
	$4,0 \cdot 10^{-4}$	$2,0 \cdot 10^{-3}$	$3,7 \cdot 10^{-2}$	$9,7 \cdot 10^{-2}$	0,24
Перебежающий	$4,1 \cdot 10^{-2}$	$1,5 \cdot 10^{-2}$	$1,8 \cdot 10^{-2}$	$2,9 \cdot 10^{-2}$	$6,0 \cdot 10^{-2}$
	$1,5 \cdot 10^{-3}$	$3,3 \cdot 10^{-4}$	$4,0 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-3}$	$6,0 \cdot 10^{-3}$
Верхней релаксации	$7,1 \cdot 10^{-2}$				
	$3,6 \cdot 10^{-4}$				

Таблица ПЗ.0.3 – Погрешность вычислений ε , $h = 0,002$. Вверху число итераций 500, внизу – 1000.

	$\tau=0,1h$	$\tau=0,2h$	$\tau=0,3h$	$\tau=0,4h$	$\tau=0,6h$
Переменных направлений	$2,1 \cdot 10^{-2}$	$4,2 \cdot 10^{-4}$	$6,0 \cdot 10^{-5}$	$5,0 \cdot 10^{-5}$	$5,0 \cdot 10^{-5}$
	$4,2 \cdot 10^{-4}$	$8,0 \cdot 10^{-5}$	$5,0 \cdot 10^{-5}$	$5,0 \cdot 10^{-5}$	$5,0 \cdot 10^{-5}$
Ромб	$1,3 \cdot 10^{-2}$	$5,5 \cdot 10^{-2}$	0,18	0,29	0,45
					0,23

	$4,0 \cdot 10^{-4}$	$2,0 \cdot 10^{-3}$	$4,0 \cdot 10^{-2}$	$9,0 \cdot 10^{-2}$	
Перебежающий	$4,1 \cdot 10^{-2}$	$1,5 \cdot 10^{-2}$	$1,9 \cdot 10^{-2}$	$2,9 \cdot 10^{-2}$	$6,1 \cdot 10^{-2}$
	$1,5 \cdot 10^{-3}$	$3,2 \cdot 10^{-4}$	$6,0 \cdot 10^{-4}$	$2,6 \cdot 10^{-3}$	$1,0 \cdot 10^{-2}$
Верхней релаксации	$7,1 \cdot 10^{-2}$				
	$1,2 \cdot 10^{-3}$				

На Рисунке ПЗ.1 представлены зависимости относительной погрешности «ε» от общего числа арифметических операций «n» для разного числа пространственных интервалов «N».

Эти зависимости имеют линейный характер при логарифмической шкале для «ε» и не зависят от числа пространственных шагов «N» до достижения минимальных значений, определяемых пространственным усреднением вычисляемой величины по ячейке счетной области ($\varepsilon_{opt} \sim N^{-2}$).

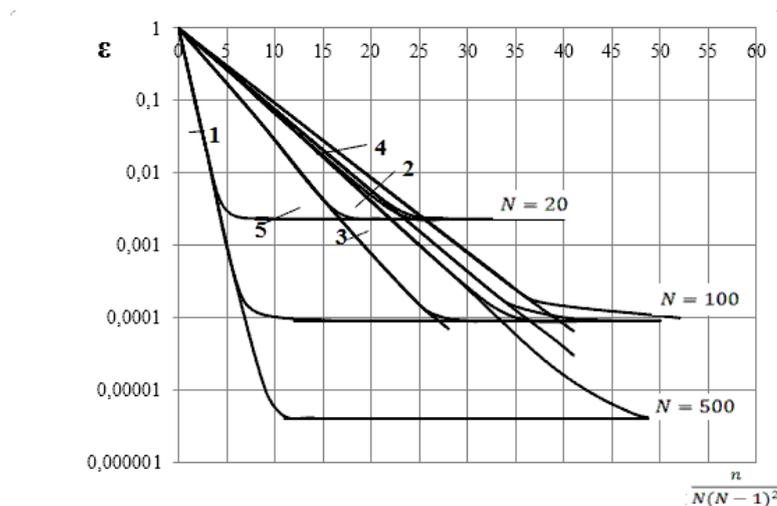


Рисунок ПЗ.1 – Зависимости относительной погрешности от общего числа арифметических операций для разного числа пространственных интервалов

Оптимальный временной шаг для метода «ромб» составляет $\tau_{opt} \approx 0,1h$, для перебежающего метода — $\tau_{opt} \approx 0,2h$ причем при $\tau > \tau_{opt}$ наблюдается быстрое увеличение погрешности с ростом τ , особенно для метода «Ромб». Для метода переменных направлений с увеличением τ до $\tau = h$ число арифметических операций для достижения той же погрешности уменьшается

примерно как τ^{-1} . Отметим, что в работе [130] для метода переменных направлений приводится оптимальное $\tau_{opt} = h/2\pi$. Для линейных частей зависимостей для «ε» можно предложить следующие выражения для числа арифметических операций «n» и числа временных итераций «m».

$$n = K_1 N(N-1)^2 \ln \frac{1}{\varepsilon}; \quad m = K_2 \ln \frac{1}{\varepsilon} \quad (\text{П3.20})$$

Здесь коэффициенты K_1, K_2 равны: $K_1 = 0,72$, $K_2 = 0,026$ – метод переменных направлений при $\tau = h$; $K_1 = 3,6$, $K_2 = 0,13$ – метод переменных направлений при $\tau = 0,2h$; $K_1 = 3,9$, $K_2 = 0,24$ – перемежающий метод при $\tau = \tau_{opt} = 0,2h$; $K_1 = 4,2$, $K_2 = 0,26$ – метод «Ромб» при $\tau = \tau_{opt} = 0,1h$; $K_1 = 3,0$, $K_2 = 0,38$ – метод верхней релаксации при $\omega = \omega_{opt} = \frac{1}{1 + \pi h}$. В работе [130] для метода переменных направлений при $\tau = h/2\pi$ получено $K_1 = 1/2\pi$, для метода верхней релаксации – $K_2 = 2/\pi$.

Результаты вычислений позволяют сделать следующие выводы:

1. Недостатком метода «ромб» является чувствительность результатов к методу вычисления первого временного шага. Лучшие результаты получены при выполнении первого шага по методу верхней релаксации, чем при его выполнении по методу Зейделя. Меньшая точность и особенно быстрый рост погрешности при $h \geq 0,1h$ также показывают, что он уступает другим рассматриваемым методам.

2. Метод верхней релаксации имеет высокую точность при $\omega = \omega_{opt} = \frac{1}{1 + \pi h}$, однако дает недостаточную устойчивость при параметрах релаксации $\omega \approx 2$.

3. Наибольшую устойчивость и повышение точности при увеличении временного шага до $\tau = h$ имеет метод переменных направлений. Некоторым недостатком является его большая сложность исполнения.

4. Наименьшую погрешность при оптимальных « τ » и одинаковом числе итераций дает метод переменных направлений, близкий к нему - перемежающий метод, несколько большую погрешность дает метод «ромб» и метод верхней «релаксации». С учетом трудоемкости каждой итерации эти различия уменьшаются.

5. Число временных итераций должно быть не менее числа пространственных интервалов, $N \geq \frac{1}{h}$ уже при их числе $N = (2 \div 3) \frac{1}{h}$ погрешность вычислений приближается к своему минимальному значению, определяемому усреднением по пространственному шагу.

6. Увеличение числа пространственных шагов более 100 (и одновременное соответственное увеличение числа итераций) не приводит к существенному уменьшению погрешности, которая и так уже является допустимой для большинства практических приложений.

7. Перемежающий метод можно рекомендовать наряду с методом переменных направлений как эффективный итерационный метод при временном шаге $\tau = 0,2h$.

ПРИЛОЖЕНИЕ 4.

Тестирование двухстороннего (перемежающего) метода решения нестационарного уравнения теплопроводности

а) Задача остывания плоского слоя.

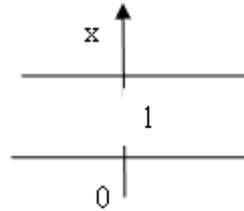


Рисунок П4.1 - Схема задачи.

Начальная температура $T(x,0) = T_0 \sin \frac{\pi x}{l}$. На границах $x = 0, x = l$ поддерживается нулевая температура. $T(0,t) = T(l,t) = 0$.

Точное решение для распределения температуры во времени:

$$T(x,t) = T_0 \sin \frac{\pi x}{l} \exp\left(-\frac{x\pi^2 t}{l^2}\right)$$

Ниже приведена программа вычислений предложенным ускоренным методом при $\tau = \frac{20}{L^2}$; $L = \frac{1}{h} = 800$. Отметим, что явный метод, уже не считая при

$$\tau > \frac{1}{2L^2}.$$

```
int i, j;
```

```
const int L = 800, M = L * L / 200; ( $M = L \cdot L / 40$ )
```

```
double[] U = new double[M + L];
```

```
#endregion
```

```
for (i = 0; i <= L; i++)
```

```
U[i] = Math.Sin(Math.PI * i / L);
```

```
for (j = 1; j <= M; j++)
```

```
{
```

```
    for (i = 1; i <= L - 1; i++)
```

```

{
  U[i] = (10 * (U[i - 1] + U[i + 1]) - 9 * U[i]) / 11;
}
for (i = L - 1; i >= 1; i--)
  U[i] = (10 * (U[i - 1] + U[i + 1]) - 9 * U[i]) / 11;
}

```

Результаты вычислений приведены в таблице П4.1, где в числителе данные численного расчета, в знаменателе – аналитического.

Таблица П4.1 – Результаты вычислений, в числителе данные численного расчета, в знаменателе – аналитического.

	$U(0,25)$	$U(0,5)$	$U(0,75)$	$\frac{U(0,25)}{U(0,5)}$
$t'=0,1$	$\frac{0,2639}{0,2635}$	$\frac{0,3732}{0,3727}$	$\frac{0,2639}{0,2635}$	$\frac{0,7071}{0,7071}$
$t'=0,5$	$\frac{0,005124}{0,005085}$	$\frac{0,007246}{0,007192}$	$\frac{0,005124}{0,005085}$	$\frac{0,7071}{0,7071}$

Можно отметить устойчивость метода при шаге во времени в 40 раз большем предельного шага явного метода, а также очень хорошее воспроизведение зависимости от координаты.

В то же время временная аппроксимация также является достаточной для практических задач.

б) Двумерная задача остывания квадратного стержня с начальным скачком температуры на границе.

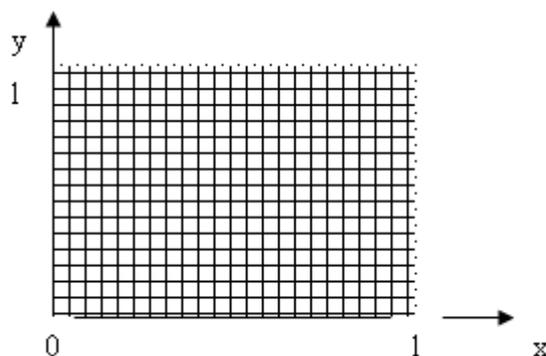


Рисунок 0.1 - Схема задачи

Начальная температура $T(x, y, 0) = T_0$. Граничные условия при $t \geq 0$, $T_{zp} = 0$. Аналитическое решение [121].

$$\frac{T(x, y)}{T_0} = \left[\frac{4}{\pi} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{(2n+1)} \exp\left(\frac{-\chi(2n+1)^2 \pi^2 t}{l^2}\right) \cos \frac{(2n+1)}{l} \pi \left(\frac{l}{2} - x\right) \right] \cdot \left[\frac{4}{\pi} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{(2n+1)} \exp\left(\frac{-\chi(2n+1)^2 \pi^2 t}{l^2}\right) \cos \frac{(2n+1)}{l} \pi \left(\frac{l}{2} - y\right) \right]$$

При замене переменных $U = \frac{T}{T_0}$; $t' = \frac{\chi}{l^2} t$; $x' = \frac{x}{l}$; $y' = \frac{y}{l}$ получим уравнение

$$\frac{\partial^2 U}{\partial t'} = \frac{\partial^2 U}{\partial x'^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial y'^2}; \quad 0 \leq x' \leq 1; \quad 0 \leq y' \leq 1; \quad U(x', y', 0) = 1; \quad U_{zp}(t') = 0.$$

Расчет произведен ускоренным методом с расщеплением (уравнений П3.3, П3.4) при $\tau = 10h^2$, а также методом переменных направлений при таком же шаге "τ". Принятый пространственный шаг $h_1 = h_2 = h = \frac{1}{400}$.

В таблице П4.2 в числителях приведены численные значения, в знаменателях – аналитические.

Таблица П4.2 – В числителях приведены численные значения, в знаменателях – аналитические.

	Двухсторонний ускоренный		Переменных направлений	
	U(0,25; 0,25)	U (0,5;0,5)	U(0,25; 0,25)	U (0,5;0,5)
$t' = 0,04$	$\frac{0,3788}{0,3786}$	$\frac{0,7150}{0,7154}$	$\frac{0,3785}{0,3786}$	$\frac{0,7150}{0,7154}$
$t' = 0,2$	$\frac{0,01576}{0,01568}$	$\frac{0,03160}{0,03130}$	$\frac{0,01576}{0,01568}$	$\frac{0,03126}{0,03130}$

Несмотря на скачкообразное изменение начальной температуры у границы оба метода оказались устойчивыми. При близкой аппроксимации предлагаемый двухсторонний ускоренный метод по сравнению с методом переменных направлений существенно более прост и занимает в два раза меньше

машинного времени. Это преимущество увеличивается при усложнении граничных условий и формы расчетной области.

в) Нагрев цилиндра однородным объемным источником Q .

Цилиндр $0 \leq r \leq a$ с нулевой начальной температурой $T(r,0)=0$. При $t=0$ включается объемный источник тепла Q . На границе поддерживается нулевая температура $T(a,t)=0$.

Аналитическое решение [128].

$$T = \frac{Q(a^2 - r^2)}{4\lambda} - \frac{2Qa^2}{\lambda} \sum_{n=1}^{\infty} e^{-\frac{\chi}{a^2} \alpha_n^2 t} \cdot \frac{J_0\left(\frac{r}{a} \alpha_n\right)}{\alpha_n^3 J_1(\alpha_n)}, \text{ где } \alpha_n \text{ – нули функции } J_0(x).$$

В таблице П4.3 представлены значения функции Бесселя и нулей этой функции.

Таблица П4.3 – Значения функции Бесселя и нулей этой функции.

n	1	2	3	4	5	6
α_n	2,4048	5,5201	8,6537	11,7915	14,9309	18,0711
$J_1(\alpha_n)$	0,519153	-0,34026	0,271453	-0,232460	0,206547	-0,187728

$$\text{Уравнение теплопроводности } c\gamma \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \left(\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} \right) + Q.$$

Для расчета численным методом произведем замену переменных: $r' = \frac{r}{Q}$;

$$U = \frac{\lambda T}{a^2 Q}; \quad t' = \frac{\lambda t}{a^2 c \gamma} = \frac{\chi t}{a^2}. \quad \text{После замены уравнение примет вид:}$$

$$\frac{\partial U}{\partial t'} = \frac{\partial^2 U}{\partial r'^2} + \frac{1}{r'} \frac{\partial U}{\partial r'} + 1.$$

Примем $h = \frac{1}{400}$; $\tau = 20h^2$. Используем систему уравнений (П3.3, П3.4).

```
int i, j;
int L = 400, M = 4000;
double[] U = new double[M + 1];
#endregion
for (i = 0; i <= L; i++)
```

```

U[i] = 0;
for (j = 1; j <= M; j++)
{
  U[0] = ((40.0 * U[1]) - (19.0 * U[0]) + (10.0 / (L * L))) / 21.0;
  for (i = 1; i <= L - 1; i++)
    U[i] = (10.0 * (U[i - 1] * (1.0 - 0.5 / i) + U[i + 1] * (1.0 + 0.5 / i)) - 9.0 * U[i] +
10.0 / (L * L)) / 11.0;
  for (i = L - 1; i >= 1; i--)
    U[i] = (10.0 * (U[i - 1] * (1.0 - 0.5 / i) + U[i + 1] * (1.0 + 0.5 / i)) - 9.0 * U[i] +
10.0 / (L * L)) / 11.0;
}

```

Таблица П4.4– Результаты расчетов.

	Численное решение	Аналитическое решение
M=1000(t'=0,125)	U[0]= 0,115214 U[200]=0,096883	U(0)=0,1163 U(0,5)=0,09756
M=4000(t'=0,5)	U[0]=0,234225 U[200]=0,176980	U(0)=0,2346 U(0,5)=0,1669

Приближение достаточно хорошее учитывая огромный временной шаг $\tau = 20h^2$.

Таким образом, предложенный двухсторонний явно- неявный метод является абсолютно-устойчивым при внутреннем выделении тепла, как и при скачкообразных граничных условиях.

Все рассмотренные примеры подтвердили применимость рассмотренного явно- неявного двухстороннего (перемежающего) метода, который можно теперь будет применять для сложной составной структуры, для которой аналитические выражения отсутствуют.

СПИСОК ИСПОЛЬЗУЕМОЙ ЛИТЕРАТУРЫ:

- [1.](#) Waser R. Nanoionics – based resistive switching memories// Nature Materials. — 2007. — V.6. — pp. 833 – 840.
- [2.](#) Wong H.-S. P. Metall-Oxide RRAM// Proceedings of the IEEE. — 2012. —V.100. — №6 — pp. 1951 – 1970.
- [3.](#) Son J. Y., Shin Y.-H. Direct observation of conducting filaments on resistive switching of NiO thin films// Appl. Phys. Lett. – 2008. – V.92. – P. 222106.
- [4.](#) Wong P. Phase change memory// Proceedings of IEEE. — 2010. — V.98. — №.12. pp. 1234 – 1246.
- [5.](#) Pellizzer F. in Proceedings of the Symposium on VLSI Technology 2006, Honolulu// IEEE. — 2006. — pp. 122.
- [6.](#) Parkin S. Magnetically Engineered Spintronic Sensors and Memory// Proc. IEEE. —2003. — V. 91. — № 5. — pp. 661–680.
- [7.](#) Julliere M. Tunneling Between Ferromagnetic-Films// Phys. Lett. A. — 1957. — V. 54. — № 3. — pp. 225–226.
- [8.](#) Durlam M. Y. Chung, M. DeHerrera, B. N. Engel, G. Grynkewich, B. Martino, B. Nguyen, J. Salter, P. Shah, and J. M. Slaughter. MRAM Memory for Embedded and Stand Alone Systems// Proceedings of the IEEE International Conference on Integrated Circuit Design and Technology, Austin. TX. — 2007. — pp. 1–4.
- [9.](#) Spintronics. // IBM J. Res &Dev. —2006. — V.50. — №1
- [10.](#) Scott J.F. Ferroelectric memories, J.F. Scott, C.A. Paz-de-Araujo// Science, USA. — 1989. — V. 246. — pp.1400-5.
- [11.](#) Sheikholeslami A. A, P. G. Gulak. Survey of Circuit Innovations in Ferroelectric Random-access Memories// Proc. IEEE. — 2000. — V. 88. — №.5. pp. 667–689.
- [12.](#) Kato Y., Yamada T., Shimada Y. 0.18- μ m Nondestructive Readout FeRAM Using Charge Compensation Technique// IEEE Trans. Elect. Dev. — 2005. — V. 52. — №12. — pp. 2616–2621.

- [13.](#) Kim K., Lee S.. Integration of Lead Zirconium Titanate Thin Films for High Density Ferroelectric Random Access Memory//J. Appl. Phys. — 2006. — V.100. — №5, pp. 051604.
- [14.](#) Dawber M., Rabe K. M., Scott J. F. Physics of Thin-Film Ferroelectric Oxides//Rev. Mod. Phys. — 2005. — V.77. — №4. —pp. 1083–1130.
- [15.](#) Joo H. J., Kang S. K., Park J. H., Kim H. S, Kim J. H., Jung J. Y., Choi D. Y. A Novel ATE (Additional Top-Electrode) Scheme for a 1.6 V FRAM Embedded Device at 180 nm Technology// Int. Ferro. — 2007. — V.89. — №1. — pp.106–115.
- [16.](#) Пахомов. С. Флэш–память на любой вкус// Компьютер пресс. —2004. <http://www.compress.ru/article.aspx?id=12401&iid=472>.
- [17.](#) Toshiba America Electronic Components, Inc. NAND vs. NOR Flash Memory: Technology Overview. http://www.toshiba.com/taec/components/Generic/Memory_Resources/NANDvsNOR.pdf.
- [18.](#) Micron Technology, Inc. NAND Flash 101: An Introduction to NAND Flash and How to Design It in to Your Next Product // Technical Note N. TN-29–19. <http://download.micron.com/pdf/technotes/nand/tn2919.pdf>
- [19.](#) Kim K., Choi J. Future Outlook of NAND Flash Technology for 40nm Node and Beyond// Proceedings of the IEEE. Non-Volatile Semiconductor Memory Workshop, Monterey, CA. — 2006. — pp. 9–11.
- [20.](#) Lai S. K. Flash Memories: Successes and Challenges.//IBM J. Res.&Dev. — 2008. — V. 52. — №4/5. — pp.529–535.
- [21.](#) Kim K. Technology for Sub-50nm DRAM and NAND Flash Manufacturing//Proceedings of the IEEE International Electron Devices Meeting, Washington, DC. —2005. — pp. 323–326.
- [22.](#) International Technology Roadmap for Semiconductors, ITRS. — 2006. <http://www.itrs.net/Links/2006Update/2006UpdateFinal.htm>
- [23.](#) International Technology Roadmap for Semiconductors (ITRS), ITRS. — 2005. <http://www.itrs.net/reports.html>
- [24.](#) A. Sawa. Resistive Switching in Transition Metal-Oxide//Materials Today. — 2008. — V. 11. — pp. 28-36.

- [25.](#) Simmons J. G., Verderbert R. R. New Conduction and Reversible Memory Phenomena in Thin Insulating Films// Proc. Roy. Soc. A. — 1967. —V.301. — pp. 77-102.
- [26.](#) Zhuang W.W, Camas W. A., Pan W., Ulrich B.D. Novel colossal magnetoresistive thin film nonvolatile resistance random access memory (RRAM)// Electron Devices Meeting. 2002. IEDM '02. International. — pp. 193-196.
- [27.](#) Baek I.G., Lee M.S., Seo S., Lee M.J. Highly scalable nonvolatile resistive memory using simple binary oxide driven by asymmetric unipolar voltage pulses//Electron Devices Meeting. 2004. IEDM Technical Digest. IEEE International. — pp. 587 – 590.
- [28.](#) Hickmott T. W. Low-Frequency Negative Resistance in Thin Anodic Oxide Films//J. Appl. Phys. — 1962. —V. 33. — p. 2669.
- [29.](#) Hiatt W. R., Hickmott W. Bistable switching in niobium oxide diodes//Appl. Phys. Lett. — 1965. — V. 6. — pp. 106-108.
- [30.](#) Chen A., Haddad S., Wu Y.C., Fang T.N., Kaza S., Lan Z. Erasing characteristics of Cu₂O metal –insulator-metal resistive switching memory// Appl. Phys. Lett. – 2008. – V. 92. – p. 013503.
- [31.](#) Walczyk C., Wenger Ch., Sohal R., Lukosius M. Fox Pulse-induced low-power resistive switching in HfO₂ metal-insulator-metal diodes for nonvolatile memory applications//Journal of Applied Physics. — 2009. — V.105. — pp. 114103-1 – 114103-6.
- [32.](#) Govoreanu B., Kar G. S., Chen Y. -Y., Paraschiv V., Kubicek S., Fantini A., Radu I. P., Goux L., Clima S., Degraeve R., Jossart N., Richard O., Vandeweyer T., Seo K., Hendrickx P., Pourtois G., Bender H., Altimime L., Wouters D. J., Kittl J. A., Jurczak M. 10 × 10 nm² Hf/HfO_x crossbar resistive RAM with excellent performance, reliability and low-energy operation//Electron Devices Meeting (IEDM). IEEE International 2011. — pp. 31.6.1–31.6.4.
- [33.](#) Chang W. Y, Lai Y. C., Wu T. B., Wang S. F., Chen F., Tsai M. J. Bipolar resistive switching characteristics of ZnO thin films for nonvolatile memory applications//Appl. Phys. Lett. — 2008. —V.92. — p.022110

- [34.](#) Chen A., Haddad S., Wu Y.-C., Fang T.-N., Lan Z., Avanzino S., Pangrle S., Buynoski M., Rathor M., Cai W., Tripsas N., Bill C., VanBuskirk M., Taguchi M. Non-volatile resistive switching for advanced memory applications//IEEE Int. Electron Devices Meeting. — 2005. — pp.746–749.
- [35.](#) Rohde C., Choi B. J., Jeong D. S., Choi S., Zhao J. S., and Hwang C. S. Identification of a determining parameter for resistive switching of TiO₂ thin films// Appl. Phys. Lett. — 2005. — V. 86— p. 262907.
- [36.](#) Terakura K., Williams A. R., Oguchi T., Kubler J. Transition –Metal Monoixdes: Band or Mott Insulator //Physical Review Letters – 1984. – V. 52 – p.1830
- [37.](#) Lunkenheimer P., Loidl A., Ottermann C. R., and Bange K. Correlated barrier hopping in NiO films//Physical Review B – 1991. – V. 44 – p. 5927
- [38.](#) Stanescu S., Boeglin C., Barbier A. and Deville J.-P. Growth mode of NiO on Cu (111) studied using scanning tunneling microscopy and surface x-ray diffraction//Physical Review B – 2003. – V. 67 – p.035419
- [39.](#) Kim D. S. and Lee H. C. Nickel vacancy behavior in the electrical conductance of nonstoichiometric nickel oxide film//J. Appl. Phys. – 2012. – V. 112– p.034504.
- [40.](#) Ang R., Chen T. P., Liu Z., Wong J. I., Yi M. D., Yang M., Cen Z. H., Zhu S., Zhu W. and Goh E. S. M. Charging effect and capacitance modulation of Ni-rich NiO thin film// Appl. Phys. Lett. – 2009. – V.95 – p.012104.
- [41.](#) Seo S., Lee M. J., Seo D. H., Jeoung E. J., Suh D.-S., Joung Y. S., and Yoo I. K., Hwang I. R., Kim S. H., Byun I. S., Kim J.-S., Choi J. S., and Park B. H. Reproducible resistance switching in polycrystalline NiO films//Applied Physics Letters – 2004. – V. 85(23). – pp.5655–5657.
- [42.](#) Gibbons J. F. and Beadle W. E. Switching properties of thin Nio films//Solid-State Electronics –1964. – V. 7. – pp.785 – 790.
- [43.](#) Hickmott T.W. Electroluminescence, Bistable Switching, and Dielectric Breakdown of Nb₂O₅Nb₂O₅ Diodes//J.Vac.Sci.Tech. – 1969. –V.6. – p.828.

- [44.](#) Austin I. G. Polaron conduction in disordered 3d oxides// Journal of Non-Crystalline Solids. – 1970. – V.2 – p.474.
- [45.](#) Verderber R.R, Simmons J.G., Eales B. Forming processes in evaporated SiO thin films//Phil.Mag. – 1967. – V.2. – p.1049.
- [46.](#) Thurstans R. E., Wild P. C., Oxley D. R. Enhanced forming in Al-SiO-Au structures under pulsed bias//Thin Solid Films – 1974. – V.20. – p.281.
- [47.](#) Oxley D. R., Thurstans R. E, Wild P. C. Pulse experiments on electroformed MIM structures//Thin Solid Films – 1974. – V. 20. – pp.23–31.
- [48.](#) Oxley D. R. Electroforming, switching and memory effects in oxide thin films//Electrocomponent Science and Technology – 1977. – V.3. – pp.217–224.
- [49.](#) Thurstans R. E., Oxley D. R. The electroformed metal-insulator-metal structure: a comprehensive model//J. Phys. D: Appl. Phys. – 2002. – V.35. – pp.802–809.
- [50.](#) Collins R. A., Gould R. D. Hot electron transport and emission in Au-SiO-Au thin film cathodes//Solid-state electronics. – 1971. – V.14. – p.805.
- [51.](#) Bischoff M., Pagnia H. Electroluminescence spectra from gold island structure thin films//Thin solid films. – 1975. – V.29. – p.303.
- [52.](#) Dearnaley G., Morgan D.V., Stoneham A.M. A model for filament growth and switching in amorphous oxide films//Journal of Non-crystalline solids. – 1970. – V.4. – p.593.
- [53.](#) Berg F., Pagnia H., N. Sotnik. Energy threshold behavior of electron induced MIM switching// Physica status solidi. – 1986. – a. 95. – k.91.
- [54.](#) Seo S., Lee M. J., Seo D. H., Choi S. K., Suh D.-S., Joung Y. S., Yoo I. K., Byun I. S., Hwang I. R., Kim S. H., and Park B. H. Conductivity switching characteristics and reset currents in NiO films//Applied Physics Letters. – 2005.– V.86. – p.093509.
- [55.](#) Lalevic B., Fuschillo N. and Leung B. Switching processes and dielectric breakdown in NiO and NiO (Li) thin films//Physica status solidi A. – 1974. – V.23. – p.61.

[56.](#) Kim D. C., Seo S., Ahn S. E., Suh D.-S., Lee M. J., Park B.-H, and Yoo I. K., Baek I. G., Kim H.-J., Yim E. K., Lee J. E., Park S. O., Kim H. S., Chung U-In, Moon J. T., and Ryu B. I. Electrical observations of filamentary conductions for the resistive memory switching in NiO films//Applied Physics Letters. – 2006. – V.88. – p.202102.

[57.](#) Chen T. P., Tse M. S., and Zeng X. Snapback behavior of the postbreakdown I–V characteristics in ultrathin SiO₂ films//Appl. Phys. Lett. – 2001. – V.78. – p.492.

[58.](#) Ralph J.E., Woodcock J.M. A new filamentary model for voltage formed amorphous oxide films//J.Non-Cryst.Solids. – 1972. – V.7. – p.236.

[59.](#) Shima H., Takano F., and Akinaga H., Tamai Y., Inoue I. H., Takagi H. Resistance switching in the metal deficient-type oxides: NiO and CoO//Appl. Phys. Lett. – 2007. –V.91. – p.012901.

[60.](#) Sato Y., Kinoshita K., Aoki M., and Sugiyama Y. Consideration of switching mechanism of binary metal oxide resistive junctions using a thermal reaction model//Appl. Phys. Lett. –2007. – V.90. – p.033503.

[61.](#) Choi B., Choi S., Kim K. M., Shin Y. C., and Hwang C. S., Hwang S.-Y., Cho S.-S., Park S., and Hong S.-K. Study on the resistive switching time of TiO₂ thin films//Appl. Phys. Lett. –2006. – V.89. – p.012906.

[62.](#) Choi B. J., Jeong D. S., and Kim S. K., Rohde C., Choi S., Oh J. H., Kim H. J., and Hwanga C. S., Szot K. and Waser R., Reichenberg B., Tiedke S. Resistive switching mechanism of TiO₂ thin films grown by atomic-layer deposition//Journal of Applied Physics. – 2005. – V.98. – p.033715.

[63.](#) Rohde C., Choi B. J., Jeong D. S., Choi S., Zhao J.-S., and Hwang C. S. Identification of a determining parameter for resistive switching of TiO₂ thin films// Appl. Phys. Lett. – 2005. – V.86. – p.262907.

[64.](#) Jung K., Seo H., Kim Y., Im H., Hong J., Park J.-W. and Lee J.-K. Temperature dependence of high- and low-resistance bistable states in polycrystalline NiO films//Appl. Phys. Lett. – 2007. – V.90. – p.052104.

- [65.](#) Walter E. C., Penner R. M., Liu H., Ng K. H., Zach M. P., Favier F. Sensors from electrodeposited metal nanowires//Surface & Interface Analysis. – 2002. – V.34. – p.409.
- [66.](#) Yoo I. K., Kang B. S., Park Y. D., Lee M. J. and Park Y. Interpretation of nanoscale conducting paths and their control in nickel oxide (NiO) thin films//Appl. Phys. Lett. – 2008. – V.92. – p.202112.
- [67.](#) Son J. Y. and Shin Y.-H. Direct observation of conducting filaments on resistive switching of NiO thin films//Appl. Phys. Lett. – 2008. – V.92. – p.222106.
- [68.](#) Russo U., Ielmini D., Cagli C., Lacaíta A. L. Filament Conduction and Reset Mechanism in NiO-Based Resistive-Switching Memory (RRAM) Devices - Electron Devices//IEEE Transactions. – 2009. – V.56(2). – pp.186–192.
- [69.](#) Russo U., Ielmini D., Cagli C., Lacaíta A. L. Self-Accelerated Thermal Dissolution Model for Reset Programming in Unipolar Resistive-Switching Memory (RRAM) Devices//Electron Devices, IEEE Transactions. – 2009. – V.56(2). – pp. 193–200.
- [70.](#) Kim S. I., Lee J. H., Chang Y. W., Hwang S. S. and Yoo K.-H. Reversible resistive switching behaviors in NiO nanowires//Appl. Phys. Lett. – 2008. – V.93. – pp.033503.
- [71.](#) Ye J. Y., Li Y. Q., Gao J., Peng H. Y., Wu S. X. and Wu T. Nanoscale resistive switching and filamentary conduction in NiO thin films//Appl. Phys. Lett. – 2010. – V.97. – p.132108.
- [72.](#) Davydov D. N., Haruyama J., Routkevitch D., Statt B. W., Ellis D., Moskovits M., and Xu J. M. Nonlithographic nanowire-array tunnel device: Fabrication, zero-bias anomalies, and Coulomb blockade//Phys. Rev. – 1998. – B 57. – p.13550.
- [73.](#) Hwang I., Choi J., Hong S., Kim J.-S., Byun I.-S., Bahng J. H., Koo J.-Y., Kang S.-O. Park and B. H. Direct investigation on conducting nanofilaments in single-crystalline Ni/NiO core/shell nanodisk arrays//Appl. Phys. Lett. – 2010. – V.96. – p053112.

[74.](#) Kim D. S. and Lee H. C. Nickel vacancy behavior in the electrical conductance of nonstoichiometric nickel oxide film//J. Appl. Phys. – 2012. – V. 112. – p.034504.

[75.](#) Kinoshita K., Tsunoda K., Sato Y., Noshiro H., Yagaki S., Aoki M. and Sugiyama Y. Reduction in the reset current in a resistive random access memory consisting of NiO_x brought about by reducing a parasitic capacitance//Appl. Phys. Lett. – 2008. – V.93. – p.033506.

[76.](#) Park G., Li X.-S., Kim D.-C., Jung R.-J., Lee M.-J. and Seo S. Observation of electric-field induced Ni filament channels in polycrystalline NiO_x film//Appl. Phys. Lett. – 2007. – V.91. – p.222103.

[77.](#) Cagli, C., Nardi, F., Ielmini, D. Modeling of Set/Reset Operations in NiO-Based Resistive-Switching Memory Devices - Electron Devices//IEEE Transactions on – 2009. – V.56(8). – pp 1712–1720.

[78.](#) Nardi F., Ielmini D., Cagli C., Spiga S., Fanciulli M., Goux L., Wouters D. J. Control of filament size and reduction of reset current below 10 μA in NiO resistance switching memories//Solid-State Electronics – 2011. –V.58(1). – pp 42–47.

[79.](#) Физические величины. Справочник. Ред. И. С. Григорьева и Е. В. Мейлихова// Энергоатомиздат. Москва. 1991г, 1232с.

[80.](#) Таблицы физических величин. /Ред. И. К. Киккоина//Атомиздат. Москва, 1976г.

[81.](#) Чиркин В. С. Теплофизические свойства материалов ядерной физики. – Москва: Атомиздат, 1968. – 484 с.

[82.](#) Миснар А. Теплопроводность твердых тел, жидкостей, газов и их композиций. – Москва: Мир, 1968. – 464 с.

[83.](#) Ларионов Л. Н., Юрченко Ю. Ф. Структура и свойства материалов и сплавов. Тепловые свойства металлов и сплавов. Справочник. – Киев: Наукова Думка, 1985. – 440 с.

[84.](#) Теплопроводность твердых тел. Справочник. /Под редакцией А. С. Охотина/Москва: Энергоатомиздат, 1984. – 321с.

[85.](#) Кржижановский Р. Е., Штерн З. Ю. Теплофизические свойства неметаллических материалов (окислы). Справочная книга. – Ленинград: Энергия, 1973.

[86.](#) Зиновьев В. Е. Теплофизические свойства металлов при высоких температурах. Справочник. – Москва:Металлургия, 1989. – 384 с.

[87.](#) Теплофизические свойства веществ и материалов. – Москва: Стандартов, 1979. – вып.13 – 60 с.

[88.](#) Теплофизические свойства веществ при высоких температурах. – Москва: Институт высоких температур АН СССР,197. – 204 с.

[89.](#) De Vries J. W. C. Temperature-dependent resistivity measurements on polycrystalline SiO₂-covered thin nickel films//Thin Solid Films – 1987. – V.150, Issues 2–3, pp 209–215.

[90.](#) De Vries J. W. C. Temperature and thickness dependence of the resistivity of thin polycrystalline aluminium, cobalt, nickel, palladium, silver and gold films//Thin Solid Films. – 1988. – V.167, Issues 1–2. – pp.25–32.

[91.](#) Ohgai T., Gravier L., Hoffer X., Lindeberg M., Hjort K., Spohr R. and Ansermet J-Ph. Template synthesis and magnetoresistance property of Ni and Co single nanowires electrodeposited into nanopores with a wide range of aspect ratios//Journal of Physics D: Applied Physics. – 2003. –V.36. – pp.3109–3114.

[92.](#) Ou M. N., Yang T. J., Harutyunyan S. R., Chen Y. Y., Chen C. D. and Lai S. J. Electrical and thermal transport in single nickel nanowire//Appl. Phys. Lett. – 2008. – V.92. – pp. 063101.

[93.](#) Mayadas A. F., Shatzkes M. and Janak J. F. Electrical resistivity model for polycrystalline films: the case of specular reflection at external surfaces//Appl. Phys. Lett. – 1969. – V.14. – p.345.

[94.](#) Yamane T., Mori Y., Katayama S. and Todoki M. Measurement of thermal diffusivities of thin metallic films using the ac calorimetric method//J. Appl. Phys. – 1997. – V.82. – p.1153.

[95.](#) Shim M. T. and Moore W. J. Diffusion of Nickel in Nickel Oxide//J. Chem. Phys. – 1957. – V.26. – p.802.

- [96.](#) Sato H., Minami T., Takata S., Yamada T. Transparent conducting p-type NiO thin films prepared by magnetron sputtering//Thin Solid Films. – 1993. –V.236, Issues 1–2. – pp.27–31.
- [97.](#) Chen H.-L., Lu Y.-M, Hwang W.-S. Characterization of sputtered NiO thin films//Surface and Coatings Technology. – 2005. – V.198, Issues 1–3. – pp.138–142.
- [98.](#) Slack G. A. and Newman R. Thermal Conductivity of MnO and NiO//Phys. Rev. Lett. – 1958. – V.1. – p.359.
- [99.](#) Atkinson A., Taylor R. I. The self-diffusion of Ni in NiO and its relevance to the oxidation of Ni//Journal of Materials Science. – 1978. – V.13, Issue 2. – pp 427–432.
- [100.](#) Mitoff S. P. Electrical Conductivity and Thermodynamic Equilibrium in Nickel Oxide//J. Chem. Phys. – 1961. – V.35. – p.882.
- [101.](#) Parravano G. Thermoelectric Behavior of Nickel Oxide//J. Chem. Phys. – 1955. – V.23. – p.5.
- [102.](#) Karakasidis T. and Meyer M. Grain-boundary diffusion of cation vacancies in nickel oxide: mA molecular-dynamics study//Phys. Rev. B. – 1997. –V.55. – p.13853.
- [103.](#) Choi J. Sh., Walter J. Moore. Diffusion of nikel in single crystals of nikel oxide//J. Phys. Chem. – 1962. – V.66 (7). – pp 1308–1311.
- [104.](#) Papageorgiou D. G., Karakasidis T., Evangelakis G.A. Oxygen adatom diffusion on the NiO(0 0 1) surface by molecular dynamics simulation//Physica B: Condensed Matter. – 2002. – V.318, Issues 2–3. – pp 211–216.
- [105.](#) Кофстад П. Отклонение от стехиометрии, диффузия и электропроводность в простых окислах металлов. – Москва: Мир. – 1975, 396 с.
- [106.](#) Клоцман С. М., Тимофеев А. Н., Трахтенберг И. Ш. Исследование диффузионных свойств халькогенидов переходных металлов. III. Самодиффузия никеля в окиси никеля//Физика металлов и металловедение. – 1962. – V.14(3). –pp 428–433.
- [107.](#) Lindner R. and Åkerströ Å. Diffusion of nickel-63 in nickel oxide (NiO).//Discuss. Faraday Soc. – 1957. – V.23. – pp 133–136.

[108.](#) Volpe M. L. and Reddy J. Cation Self-Diffusion and Semiconductivity in NiO//J. Chem. Phys. – 1970. – V.53. – p.1117.

[109.](#) Fueki K. and Wagner J. B. Oxidation of Manganese in CO₂ - CO Mixtures//J. Electrochem. Soc. – 1965. – V.112(10). – pp 970–974.

[110.](#) O'Keeffe M., Moore W. J. Diffusion of oxygen in single crystals of nickel oxide//J. Phys. Chem. – 1961. – V.65(8). – pp 1438–1439.

[111.](#) Химическая энциклопедия/под редакцией И. Л. Кнунянца/ – Москва: Советская энциклопедия. – 1990, 200 с.

[112.](#) Kubaschewski O., Hopkins B. E. Oxidation of metals and alloys. – London: Butterworths Scientific Publications. – 1967.

[113.](#) Song S., Xiao P. Electrical properties of the oxide film formed on nickel during high-temperature oxidation//Materials Science and Engineering: A. – 2002. – V.323, Issues 1–2. – pp 27–31.

[114.](#) López-Beltrán A. M., Mendoza-Galván A. The oxidation kinetics of nickel thin films studied by spectroscopic ellipsometry//Thin Solid Films. – 2006. – V. 503, Issues 1–2. – pp 40–44.

[115.](#) Makhlof S. A. Electrical properties of NiO films obtained by high-temperature oxidation of nickel//Thin Solid Films. – 2008. – V.516, Issue 10. – pp 3112–3116

[116.](#) Jia Z., Wang L., Zhang N., Ren T. and Liou J. J. Effects of anode materials on resistive characteristics of NiO thin films//Appl. Phys. Lett. – 2013. – V. 102. – p. 042901.

[117.](#) Воробьев Г. А., Еханин С. Г., Несмелов Н.С. Электрический пробой твердых диэлектриков//Физика твердого тела. – 2005. – том 47, вып.6. – с 1042.

[118.](#) Park G.-S., Li X.-S., Kim D.-C., Jung R.-J., Lee M.-J. and Seo S. Observation of electric-field induced Ni filament channels in polycrystalline NiO_x film//Appl. Phys. Lett. – 2007. – V. 91. – p.222103.

[119.](#) Lee M.-J., Kim S. I., Lee C. B., Yin H., Ahn S.-E., Kang B. S, Kim K. H., Park, J. C., Kim C. J., Song I., Kim S. W., Stefanovich G.B., Lee J. H., Chung S. J., Kim Y. H., Park Y. Low-Temperature-Grown Transition Metal Oxide Based

Storage Materials and Oxide Transistors for High-Density Non-volatile Memory // Adv. Funct. Mater. – 2009. – V.19. – p. 1587–1593.

[120.](#) Лыков А. В. Теория теплопроводности. – Москва, 1967. – 600 с.

[121.](#) Карслоу Г. Теплопроводность твердых тел / Карслоу Г., Егер Д. – Москва, 1964. – 488 с.

[122.](#) Беляев Н. М. Методы теории теплопроводности / Беляев Н. М., Рядно А. А. – Москва, 1982. ч. I – 328 с., ч. II – 304 с.

[123.](#) Crank G. The mathematics of diffusion, Clarendon Press/ Crank G. – Oxford. – 1975. – 985 p

[124.](#) Янке Е. Специальные функции / Янке Е., Емде Ф., Леш Ф. – Москва, 1969. – 344 с.

[125.](#) Boqert B. P. Some Roots of an Equation Involving Bessel Functions// Journal of Mathematics and Physics. – 1951. – V.30. – p.102.

[126.](#) Чистова Э. А. Таблицы функций Бесселя от действительного аргумента и интегралов от них – Москва, 1958.

[127.](#) Ielmini D., Nardi F. Cagli C. Universal Reset Characteristics of Unipolar and Bipolar Metal-Oxide RRAM//IEEE Transaction on electron devices. – 2011. – V.58., № 10. – pp 3246–3252.

[128.](#) Самарский А. А. Уравнения математической физики / Самарский А. А., Тихонов А. Н. – Москва, 1966. – 724 с.

[129.](#) Sato Y. K., Kinoshita M., Aoki Y. Consideration of switching mechanism of binary metal oxide resistive junctions using a thermal reaction model. Sugiyama//Applied Physics Letters. – 2007. – V. 90. – p. 033503.

[130.](#) Самарский А. А. Численные методы математической физики/ Самарский А. А., Гулин А. В. – Москва, 2003. – 316 с.

[131.](#) Федоренко Р. П. Введение в вычислительную физику – Москва, 2009.

[132.](#) Калиткин Н. Н. Численные методы. – Москва, 1978.

[133.](#) Саульев В. К. Интегрирование уравнений параболического типа методом сеток. – Москва, 1960. – 324 с.

[134.](#) Яненко Н. Н. Метод дробных шагов решения многомерных задач математической физики. – Новосибирск, 1967. – 196 с.

[135.](#) Марчук Г. И. Методы расщепления. – Москва, 1989. – 264 с.

[136.](#) Беляев М. А., Величко А. А., Ханин С. Д., Стефанович Г. Б., Гуртов В. А., Пергамент А. Л. Electron-beam modification and electrical property recovery dynamics of vanadium dioxide films in semiconducting and metallic phases.// Japanese Journal of Applied Physics – 2015 – v.54 – p. 051102.

[137.](#) Зайцева А. В., Зайцев В. Б., Левшин Н. Л., Форш П. А., Хлыбов С. В., Юдин С. Г. Структура и электрофизические свойства пленок жидких кристаллов, изготовленных по ленгмюровской технологии.//Физика твердого тела – 2014 – т.56, вып.2 – с. 371.