

Теплопроводность композита алмаз—парафин

© А.М. Абызов¹, С.В. Кидалов², Ф.М. Шахов²

¹ Санкт-Петербургский государственный технологический институт,
Санкт-Петербург, Россия

² Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: andabyz@mail.ru, kidalov@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 30 марта 2010 г.)

В окончательной редакции 20 мая 2010 г.)

Исследована теплопроводность композитов алмаз—парафин, полученных инфильтрацией углеводородной связки с коэффициентом теплопроводности $\lambda_m = 0.2 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ в плотный слой частиц алмаза ($\lambda_f \sim 1500 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$) с размером частиц $400 \mu\text{m}$, а также $180 \mu\text{m}$. Расчеты по распространенным моделям, рассматривающим изолированные включения в матрице, показывают, что наибольшее приближение к измеренным значениям теплопроводности композита $\lambda = 10\text{--}12 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ достигается при использовании дифференциальной эффективной модели (DEM), максвелловская схема среднего поля дает сильно заниженное расчетное значение λ , а теория эффективной среды — чрезвычайно завышенное. Соответствие расчета эксперименту может быть достигнуто методом конструирования функций теплопроводности. Расчет коэффициента теплопроводности при пороге перколяции показывает, что экспериментальная теплопроводность композитов выше этого критического значения. Установлено, что для композитов с плотноупакованными частицами алмаза (объемная доля ~ 0.63 в случае монодисперсного наполнителя) использование модели изолированных частиц (Хассельмана—Джонсона, DEM) для расчетов теплопроводности не вполне корректно, так как не учитывает перколяционную компоненту теплопроводности. В частности, это относится к расчетам тепловой проводимости границ раздела алмаз—матрица в алмазно-металлических композитах высокой теплопроводности.

Работа выполнена при частичной (С.В.К., Ф.М.Ш.) финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 09-08-01200-а) и Министерства образования и науки Российской Федерации (гос. контракт 16.740.11.0216).

В настоящее время активно проводятся исследования свойств композитов высокой теплопроводности с наполнителем из частиц алмаза, а также тепловой проводимости границ диэлектрик—диэлектрик и диэлектрик—металл [1–5]. При этом в подавляющем большинстве случаев теплопроводность алмаза экспериментально не определялась, а оценивалась по таким параметрам, как содержание в алмазе примесного азота, цвет и форма кристаллов [6]. Представляет интерес применимость существующих моделей теплопроводности композитов к системе алмаз—парафин и, как следствие, возможность определить теплопроводность мелких частиц алмаза, не прибегая к таким аппаратно-сложным методам, как стягивание теплового потока [7].

Факторами, определяющими теплопроводность композита λ , являются коэффициенты теплопроводности наполнителя λ_f и матрицы λ_m , размер частиц D и объемная доля наполнителя v_f , а также тепловая проводимость G границы раздела наполнитель—матрица. Если обеспечить путем подбора соответствующей связки относительно высокую тепловую проводимость G границы раздела алмаз—матрица, то по известным значениям λ_m , D , v_f (легко измеряемые величины) можно, приняв ту или иную модель, рассчитать значения λ_f .

В работе [8] нами был получен алмаз-медный композиционный материал с теплопроводностью

$700 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$. В качестве наполнителя использовались монокристаллические плоскогранные кубооктаэдрические частицы алмаза SDB 1085 35/45 размером около $400 \mu\text{m}$. Исходя из теплопроводности композита коэффициент теплопроводности алмазного наполнителя был оценен не менее $1000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$.

С целью независимой оценки коэффициента теплопроводности алмаза SDB 1085 35/45 в настоящей работе нами были изготовлены композиты алмаз—парафин и измерена их теплопроводность. Кроме того, композиты на парафиновой связке были получены с наполнителем из порошка алмаза AC-160 200/160 (ГОСТ 9206-80), также состоящего из преимущественно плоскогранных монокристаллов, но отличающегося более мелким размером частиц (около $180 \mu\text{m}$).

Парафин (paraffin wax) представляет собой смесь предельных углеводородов C18—C35 с температурой плавления $45\text{--}65^\circ\text{C}$, расплав парафина хорошо смачивает твердые поверхности, в том числе алмаза. Использован гомогенизированный парафин с плотностью $0.90 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ (Черкасский завод химреактивов, ТУ 6-09-4112-75). Теплопроводность парафина измеряли на приборе ИПТ-МГ4-100 при температуре около 30°C стационарным методом с точностью $\pm 5\%$. Для образцов вырезанного из заводского слитка и переплавленного парафина получены значения $\lambda_m = 0.24 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$.

Это согласуется с литературными данными, согласно которым в зависимости от состава теплопроводность парафина при температуре около комнатной находится в диапазоне $0.15–0.56 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ [9].

Композиты алмаз–парафин получены инфильтрацией расплава парафина при $70–80^\circ\text{C}$ в плотный слой частиц алмаза при атмосферном давлении и в вакууме (при давлении $0.1–1 \text{ kPa}$). Образцы имели диаметр 5 mm и длину 20 mm . Объемная доля алмаза составляла $0.62–0.63$. Теплопроводность композитов, измеренная методом стационарного аксиального теплового потока [8] при температуре около 40°C , равнялась $11.4–11.6 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ в случае наполнителя из алмаза SDB 1085 и $10.2–12.2 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ для композита с алмазом AC-160.

Зависимость коэффициента теплопроводности парафина от температуры в диапазоне от 25 до 55°C характеризуется величиной $d\lambda/dT = -3 \cdot 10^{-3} \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-2}$ [10], так что теплопроводность парафиновой матрицы при температуре 40°C можно принять равной $0.21 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$.

Согласно модели среднего поля, для изолированных (несоприкасающихся) в матрице частиц наполнителя теплопроводность композита описывается уравнением Максвелла

$$A = \frac{2\left(\frac{\lambda_f}{\lambda_m} - 1\right)v_d + \left(\frac{\lambda_f}{\lambda_m} + 2\right)}{\left(1 - \frac{\lambda_f}{\lambda_m}\right)v_d + \left(\frac{\lambda_f}{\lambda_m} + 2\right)} \quad (1)$$

и Хассельмана–Джонсона

$$A = \frac{2\left(\frac{\lambda_f}{\lambda_m} - B - 1\right)v_d + \left(\frac{\lambda_f}{\lambda_m} + 2B + 2\right)}{\left(1 - \frac{\lambda_f}{\lambda_m} + B\right)v_d + \left(\frac{\lambda_f}{\lambda_m} + 2B + 2\right)}, \quad (2)$$

где $A = \lambda/\lambda_m$, $B = 2\lambda_f/(GD)$. Уравнение (2) представляет собой модификацию известного уравнения Максвелла, учитывающую тепловую проводимость границ раздела [11]. Расчеты по формулам (1), (2) показывают следующее.

а) Для диапазона возможных значений $\lambda_f = 1000–2000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ [6] рассчитанная по (1) теплопроводность композита алмаз–парафин не зависит от λ_f и составляет $1.28 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$.

б) Учет термического сопротивления границы раздела с помощью уравнения (2) дает снижение расчетной теплопроводности композита. Диапазон возможных значений G составляет $10^4–10^8 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$ [5,12]. При $G = 10^7–10^8 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$ результаты расчета λ по (1) и (2) совпадают. При $G = 10^4 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$ рассчитанное по (2) значение λ составляет $0.76 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$. Таким образом, рассчитанное по (1) и (2) значение теплопроводности композита $0.76–1.28 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ в 9–15 раз меньше, чем измеренное значение $\lambda = 11.4–11.6 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ (для совпадения с экспериментальной теплопроводностью композита матрица

должна была бы иметь величину $\lambda_m \geq 2 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, что не соответствует опытным и литературным данным).

Аналогично для композитов на парафиновой связке с алмазом AC-160 200/160 экспериментальное значение составляет $\lambda = 10.2–12.2 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$; расчет по (1) и (2) дает $\lambda = 0.52–1.28 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$.

В рамках модели изолированных частиц наполнителя в матрице гораздо лучшее приближение к нашим опытным данным дает интегральный метод, известный также как схема дифференциальной эффективной среды (DEM) [4,13]. Базисный вариант DEM представлен уравнением

$$1 - v_f = \frac{\lambda_f - \lambda}{\lambda_f - \lambda_m} \left(\frac{\lambda_m}{\lambda} \right)^{1/3}. \quad (3)$$

Дополнительный учет термического сопротивления границы раздела приводит к следующему выражению:

$$1 - v_f = \frac{\varphi - A}{\varphi - 1} A^{-1/3}, \quad (4)$$

где $\varphi = \lambda_f/[\lambda_m(1+B)]$. Найденное из соотношения (3) значение λ составляет $4.1 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, что примерно в 3 раза меньше измеренных значений λ . Очевидно, что учет термического сопротивления согласно (4) может только уменьшить расчетное значение теплопроводности.

Метод сведения к элементарной ячейке [13,14] дает чрезвычайно завышенные расчетные значения теплопроводности композита алмаз–парафин. Так, уравнение, выведенное для изолированных включений в матрице,

$$\frac{\lambda}{\lambda_f} = 1 - v_m \left(\frac{1}{1 - (\lambda_m/\lambda_f)} - \frac{1 - v_m}{3} \right)^{-1}, \quad (5)$$

где $v_m = 1 - v_f$ — объемная доля матрицы, для $\lambda_m/\lambda_f \ll 1$ и $v_m = 0.37$ дает $\lambda/\lambda_f = 0.53$ и $\lambda = 530–1060 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$.

Хаотическое распределение частиц наполнителя в матрице моделировали авторы [15]. Полученное расчетное уравнение в случае $\lambda_m/\lambda_f \ll 1$ может быть сведено к простой формуле

$$\frac{\lambda}{\lambda_f} \approx v_f^2. \quad (6)$$

Расчет по (6) для $v_f = 0.63$ дает $\lambda/\lambda_f \approx 0.4$. То же значение $\lambda/\lambda_f \approx 0.4$ при объемной доле ≈ 0.6 компонента с высокой проводимостью было получено для композитов, обладающих сильной неоднородностью состава (когда проводимость одного компонента существенно отличается от проводимости другого), при моделировании путем приведения к элементарной ячейке с учетом перколяции [14,16]. Авторы [14–16] приводят ряд экспериментальных данных по электро- и теплопроводности, согласующихся с этими расчетами. Однако полученное нами для композита алмаз–парафин значение $\lambda/\lambda_f = (0.5–1) \cdot 10^{-2}$ гораздо ниже. Вероятно, это обусловлено различиями в структуре материала:

в случае $\lambda/\lambda_f \approx 0.4$ композиты могут иметь структуры типа статистических смесей, которые нельзя разделить на матрицу и наполнитель, или взаимопроникающих компонентов.

Помимо точных уравнений имеется ряд моделей, дающих граничные значения возможных значений теплопроводности композита [17]. По Винеру [18] нижняя граница определяется последовательной моделью, а верхняя — параллельной моделью:

$$\left(\frac{v_m}{\lambda_m} + \frac{v_f}{\lambda_f}\right)^{-1} \leq \lambda \leq (v_m\lambda_m + v_f\lambda_f). \quad (7)$$

Неравенства (7) в нашем случае при $v_f = 0.63$, $\lambda_m = 0.21 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ и $\lambda_f = (1-2) \cdot 10^3 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ дают для нижней границы значение $0.56-0.57 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, для верхней — $630-1260 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$.

Более узкий диапазон дает вилка Хашина—Штрикмана [19]

$$\lambda_m + \frac{3\lambda_m}{\left(v_f \frac{\lambda_f - \lambda_m}{2\lambda_m + \lambda_f}\right)^{-1} - 1} \leq \lambda \leq \lambda_f + \frac{3\lambda_f}{\left(v_m \frac{\lambda_m - \lambda_f}{2\lambda_f + \lambda_m}\right)^{-1} - 1}. \quad (8)$$

Нижняя граница по Хашину—Штрикману (8) совпадает с уравнением Максвелла (1). Верхняя граница по (8) также математически эквивалентна уравнению Максвелла, но с инверсией индексов фаз [20] (гипотетическая структура изолированных парафиновых включений в алмазной матрице). При $\lambda_m/\lambda_f \ll 1$ неравенства (8) упрощаются до следующих:

$$\left(\frac{1+2v_f}{1-v_f}\right)\lambda_m \leq \lambda \leq \left(\frac{2v_f}{3-v_f}\right)\lambda_f. \quad (8a)$$

В нашем случае $\lambda_m/\lambda_f = (1-2) \cdot 10^{-4}$ и расчетный диапазон теплопроводности композита по (8a) составляет от 1.28 до $530-1060 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$. Видно, что экспериментальное значение теплопроводности композита алмаз—парафин находится внутри вилки Хашина—Штрикмана ближе к ее нижней границе.

Согласно модели эффективной среды, теплопроводность композита дается соотношением

$$\frac{v_f(\lambda_f - \lambda)}{\lambda_f + 2\lambda} = \frac{v_m(\lambda - \lambda_m)}{\lambda_m + 2\lambda}. \quad (9)$$

Уравнению (9) соответствует структура статистической смеси со случайным распределением обоих компонентов композита [20]. Предложено считать (9) определением верхней границы диапазона λ вместо верхней границы по Хашину—Штрикману, что приводит к сужению вилки (8) [17]. В случае $\lambda_m \ll \lambda$, λ_f отношение (9) сводится к формуле

$$\lambda/\lambda_f = \frac{3v_f - 1}{2}. \quad (9a)$$

Последнее выражение дает $\lambda/\lambda_f = 0.445$ и соответствует $450-900 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ для верхней границы теплопроводности композита алмаз—парафин. Это расчетное

значение по-прежнему существенно превышает измеренную теплопроводность $10-12 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$.

Соответствие расчета эксперименту может быть достигнуто методом конструирования функций [21], который редко используется в настоящее время. Для структур типа замкнутых включений в матрице Лихтенекер [22] рекомендует функцию

$$\lambda = \frac{(v_m\lambda_m + v_f\lambda_f)^u}{\left(\frac{v_m}{\lambda_m} + \frac{v_f}{\lambda_f}\right)^{1-u}}, \quad (10)$$

где u — частота последовательного расположения частиц включений относительно теплового потока, $1-u$ — соответственно вклад параллельной конфигурации, $0 \leq u \leq 1$ (ср. с (7)). Расчет по уравнению (10) при средней оценке теплопроводности наполнителя $\lambda_f = 1500 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ дает при $u = 0.4$ значение $\lambda = 11 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, совпадающее с экспериментальным. Этот результат нельзя признать вполне удовлетворительным, так как он достигнут путем подгонки параметра u .

При медианном значении $u = 1/2$ теплопроводность композита согласно (10) определяется выражением

$$\lambda = \sqrt{\lambda_m\lambda_f \frac{v_m\lambda_m + v_f\lambda_f}{v_f\lambda_m + v_m\lambda_f}}. \quad (11)$$

В случае $\lambda_m \ll \lambda_f$ выражение (11) упрощается до уравнения

$$\lambda = \sqrt{\frac{v_f}{v_m} \lambda_m\lambda_f}. \quad (11a)$$

Можно заметить, что уравнение (11a) соответствует нижней границе Шульгассера [23,24] для теплопроводности двухфазных композитов с ячеечной структурой с одинаковым объемным содержанием компонентов 1 и 2 ($v_1 = v_2 = 0.5$)

$$\lambda > \sqrt{\lambda_1\lambda_2}. \quad (12)$$

Расчет по (11) в нашем случае дает диапазон $\lambda = 19-27 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, что примерно вдвое больше опытных значений композита алмаз—парафин. Термическое сопротивление границы раздела наполнитель/матрица может быть учтено путем замены λ_f в (11) на $\lambda_f/(1+B)$, так же как это делается при переходе от (1) к (2) или от (3) к (4),

$$\lambda = \sqrt{\frac{v_f}{v_m} \frac{\lambda_f}{1+B} \lambda_m}. \quad (13)$$

Рачеты по уравнению (13) показывают, что для $\lambda_f = 1000-2000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ совпадение расчетных и опытных значений теплопроводности композита алмаз—парафин достигается при $G = (2-3) \cdot 10^6 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$ в случае алмаза SDB 1085 при $G = (4-8) \cdot 10^6 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$ в случае алмаза AC-160. Эти значения тепловой проводимости границы

раздела алмаз/парафин находятся в середине области физически возможных величин 10^4 – 10^8 $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$.

Таким образом, используя уравнение Лихтенекера в общем виде (10) или в частном виде (11) с учетом термического сопротивления границы раздела (13), можно описать полученные опытные данные. Хотя метод конструирования функций не относится к полупирическим, его недостатком является отчасти феноменологический характер. Так, не вполне ясно, чем обосновать выбор конкретного значения параметра u .

Вероятно, на теплопроводность композитов с плотноупакованными частицами алмазного наполнителя заметно влияют контакты между отдельными частицами алмаза, и в модели необходимо учитывать перколяционную составляющую теплопроводности. Это подтверждается следующей оценкой. Порог перколяции для проводимости в композите описывается формулой [25]

$$\lambda^* = \lambda_f \left(\frac{\lambda_m}{\lambda_f} \right)^s, \quad (14)$$

где $s = 2/3$ при $\lambda_m/\lambda_f \ll 1$. Расчет (14) по значениям $\lambda_m = 0.21 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ и $\lambda_f(1-2) \cdot 10^3 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ дает критическое значение $\lambda^* = 3.5$ – $4.5 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, которое втрое меньше измеренных теплопроводностей композита алмаз–парафин.

В заключение можно сделать следующие выводы.

1) Для полученных композитов алмаз–парафин с ярко выраженной неоднородностью состава ($\lambda_m/\lambda_f \sim 10^{-4}$) и близкой к пределу плотностью упаковки частиц ($v_f \sim 0.63$) использование моделей изолированных в матрице включений приводит к следующим результатам:

а) максвелловская схема среднего поля дает сильно заниженную оценку теплопроводности композита;

б) модель эффективной среды дает сильно завышенную оценку теплопроводности композита;

в) модель DEM приводит к расчетному значению λ , как минимум втрое меньшему измеренного;

г) метод конструирования функций, использующий произведение функций последовательной и параллельной конфигураций, обеспечивает совпадение расчетной и опытной теплопроводности композита путем варьирования параметра вклада конфигурации u либо учета термического сопротивления при среднем значении $u = 0.5$.

2) Расчет порога перколяции показывает, что в полученных композитах присутствует перколяционная компонента теплопроводности.

3) Определить коэффициент теплопроводности наполнителя по данным о теплопроводности композита для системы алмаз–парафин не удастся из-за слабой зависимости теплопроводности композита от теплопроводности алмазного наполнителя, а также ввиду неопределенности выбора расчетной модели.

4) Для композитов с плотноупакованными частицами алмаза ($v_f \sim 0.63$ в случае монодисперсного наполнителя) использование модели изолированных частиц

(Максвелла, Хассельмана–Джонсона, DEM) для расчетов теплопроводности не вполне корректно, так как не учитывает перколяционную составляющую теплопроводности. В частности, это относится к расчетам по формулам (2), (4) тепловой проводимости границ раздела алмаз–матрица в алмазно-металлических композитах высокой теплопроводности [1,3–5].

Список литературы

- [1] K. Yoshida, H. Morigami. *Microelectron. Reliab.* **44**, 303 (2004).
- [2] T. Schubert, B. Trindade, T. Weibgarber, B. Kieback. *Mater. Sci. Eng. A* **475**, 39 (2008).
- [3] L. Weber, R. Tavangar. *Adv. Mater. Res.* **59**, 111 (2009).
- [4] R. Tavangar, J.M. Molina, L. Weber. *Scripta Mater.* **56**, 357 (2007).
- [5] P.W. Ruch, O. Beffort, S. Kleiner, L. Weber, P.J. Uggowitzer. *Compos. Sci. Technol.* **66**, 2677 (2006).
- [6] Н.В. Новиков, А.Г. Гонтарь. В сб.: Алмаз в электронной технике / Под ред. В.Б. Кваскова. Энергоатомиздат, М. (1990). С. 66.
- [7] Т.Д. Оситинская, А.П. Подоба. *Промышленная теплотехника* **3**, 1, 43 (1981).
- [8] А.М. Абызов, С.В. Кидалов, Ф.М. Шахов. *Материаловедение* **5**, 24 (2008).
- [9] S. Rudtsch, H. Rogaß. 4th Asian Thermophysical Properties Conf. / Ed. A. Nagashima. Japan Society of Thermophysical Properties, Tokyo (1995). P. 559.
- [10] H. Inaba, P. Tu. *Heat. Mass Transfer* **32**, 307 (1997).
- [11] D.P.H. Hasselman, L.F. Johnson. *J. Compos. Mater.* **21**, 508 (1987).
- [12] Z. Liu, D.D.L. Chung. *J. Electron. Packaging* **128**, 319 (2006).
- [13] Г.Н. Дульнев, В.В. Новиков. *Инж.-физ. журн.* **41**, 172 (1981).
- [14] Г.Н. Дульнев, В.В. Новиков. *Процессы переноса в неоднородных средах.* Энергоатомиздат, Л. (1991). С. 29, 37, 43.
- [15] Ю.М. Милёхин, С.А. Гусев, С.Г. Жиров. *Теплопроводность неоднородных материалов.* Архитектура-С, М. (2006). С. 96.
- [16] Г.Н. Дульнев, В.В. Новиков. *Инж.-физ. журн.* **36**, 901 (1979).
- [17] J.-K. Lee. *Arch. Appl. Meth.* **77**, 453 (2007).
- [18] O. Wiener. *Abh. Math.-Phys. Kl. König. Sächs. Ges. Wiss. (Leipz.)* **32**, 509 (1912).
- [19] Z. Hashin, S. Shtrikman. *J. Appl. Phys.* **33**, 3125 (1962).
- [20] J.K. Carson, S.J. Lovatt, D.J. Tanner, A.C. Cleland. *Int. J. Heat Mass Transfer* **48**, 2150 (2005).
- [21] Г.Н. Дульнев, Ю.П. Заричняк. *Теплопроводность смесей и композиционных материалов.* Энергия, Л. (1974). С. 50.
- [22] K. Lichtenecker. *Phys. Z.* **30**, 22, 805 (1929).
- [23] K. Schulgasser. *J. Math. Phys.* **17**, 278 (1976).
- [24] G. Grimvall, M. Soderberg. *Int. J. Thermophys.* **7**, 207 (1986).
- [25] С.В. Хорьков. *Письма в ЖТФ* **31**, 10, 35 (2005).