

01;06

ВЛИЯНИЕ ФОРМЫ ВКЛЮЧЕНИЙ НА ПРОВОДИМОСТЬ ДВУМЕРНЫХ РЕГУЛЯРНЫХ МАТРИЧНЫХ СИСТЕМ

© И. Н. Сачков

Уральский государственный технический университет,
620002 Екатеринбург, Россия
(Поступило в Редакцию 3 августа 1995 г.)

Методом конечных элементов установлены значения эффективных коэффициентов переноса для двухфазных матричных систем с квадратными, круглыми, крестообразными и кольцевыми включениями. Анализируется влияние полидисперсности на проводимость систем. Обсуждается связь величины эффективного коэффициента переноса и спектра значений градиента потенциала поля.

Введение

Двумерные матричные структуры характерны для двухфазных пленок, используемых в ряде изделий микроэлектроники [1,2], а также для поперечных сечений многих композиционных и многофазных материалов [3-6]. Очевидно, что величина эффективной проводимости σ_e гетерофазного материала может существенно зависеть от топологии границ раздела его фазовых составляющих. Однако корректный расчет величин σ_e даже для простейших матричных структур возможен лишь при наложении существенных ограничений. В частности, в работах [6,7] получены аналитические выражения для проводимостей двумерных систем с регулярно расположенными круглыми и квадратными включениями, обладающими нулевой либо бесконечно большой проводимостью, а в работе [8] — для системы с бесконечно тонкими непроводящими крестообразными включениями. Известны также решения обсуждаемой задачи для трех- и двумерных разбавленных [5,9] и статистических [10,11] систем, для которых фактор формы проводящих областей оказывается несущественным.

Авторы цитированных выше работ отмечали трудности, связанные с необходимостью учета взаимного влияния компонент гетерогенной системы на формирующееся в них распределение потенциала. Между тем в работе [12] предложен новый подход к описанию процессов переноса в дисперсных средах, основанный на методе конечных элементов,

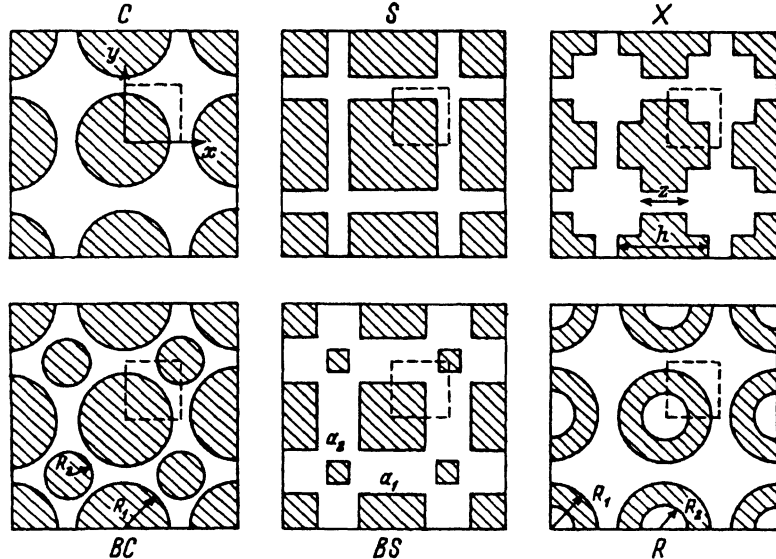


Рис. 1. Схемы обсуждаемых структур.
Заштрихованы области с проводимостью, равной δ_i .

позволяющий гибко учитывать геометрические особенности проводящей среды. В [12] было, в частности, показано, что проводимость матричной системы существенно зависит от корреляций взаимного расположения частиц. Исследуем теперь этим же методом влияние формы частиц регулярной двухфазной матричной системы на величину ее эффективного коэффициента переноса.

Схемы обсуждаемых двухфазных структур представлены на рис. 1. Проводящая система образована матрицей, обладающей проводимостью σ_m и периодически расположенными в ней включениями различной формы с локальными проводимостями, равными σ_i . Примем проводимость материала матрицы (незаштрихованная компонента на рис. 1) σ_m равной 1. Системы *C*, *S* и *X* содержат монодисперсные частицы круглой, квадратной и крестообразной форм; *BC* и *BS* — бидисперсные системы круглых и квадратных включений. Помимо матричных, рассмотрим и структуру *R* с кольцевыми областями, позволяющую анализировать некоторые особенности протекания тока в средах со взаимопроницающими компонентами.

Методика расчета

Ограничимся в настоящей работе обсуждением структур, в которых геометрические центры частиц образуют квадратные решетки. Благодаря наличию в рассматриваемых системах симметрии, характеризуемой осью вращения четвертого порядка, перпендикулярной базисной плоскости их проводимости макроскопически изотропны. Выделим квадратные элементарные ячейки, границы которых проходят по линиям зеркальной симметрии параллельно образующим квадратной решетки. Для расчета эффективных проводимостей системы ис-

пользуем ячейки минимального размера, ограниченные на рис. 1 штриховыми линиями.

Выберем в качестве начала отсчета прямоугольной системы координат (X, Y) одну из вершин ячейки, направив оси вдоль ее сторон, и перейдем к безразмерным переменным $y = Y/d$, $x = X/d$, где d — размер элементарной ячейки. Проводимость ячейки в направлении оси y можно установить с помощью одного из трех следующих соотношений:

$$\sigma_{e1} = I_1/\Delta\varphi, \quad (1)$$

$$\sigma_{e2} = I_2/\Delta\varphi, \quad (2)$$

$$\sigma_{e3} = \langle j \rangle / \langle f \rangle, \quad (3)$$

где $\Delta\varphi = \varphi_2 - \varphi_1$ — разность потенциалов между верхней и нижней границами элементарной ячейки, полагаемая в дальнейшем равной 1,

$$I_{1,2} = \int_0^1 j_{1,2}(x) dx,$$

$$j_{1,2}(x) = \sigma(x, 0) \partial\varphi / \partial y|_{y=0;1}$$

$$\langle j \rangle = \int_{S_c} \sigma \partial\varphi / \partial y dS,$$

$$\langle g \rangle = \int_{S_c} \partial\varphi / \partial y dS.$$

Здесь $I_{1,2}$ — суммарные токи через изопотенциальные границы ячейки, $j_{1,2}$ — плотности токов в окрестности границ, индексы 1 и 2 соответствуют значениям $y = 0$ и $y = 1$, S_c — площадь элементарной ячейки. В рассматриваемых условиях значение эффективной проводимости σ_e рассчитывается путем усреднения величин σ_{ei} , установленных с помощью трех различных выражений (1)–(3). При этом сопоставление этих трех величин с их средним значением σ_e позволяет оценить погрешность определения величины коэффициента переноса и убедиться в корректности компьютерной реализации модели проводящей среды.

Благодаря наличию зеркальной симметрии потенциал постояен вдоль прямых $y = 0$ и $y = 1$, а прямые $x = 0$ и $x = 1$ являются границами, непроницаемыми для потока. Зададим граничные условия следующими равенствами

$$\varphi(x, y)|_{y=0} = \varphi_1,$$

$$\varphi(x, y)|_{y=1} = \varphi_2, \quad (4)$$

$$\partial\varphi(x, y)/\partial x|_{x=1} = \partial\varphi(x, y)/\partial x|_{x=0} = 0. \quad (5)$$

Уравнения (4) формально соответствуют граничным условиям 1-го рода, соотношения (5) — условиям отсутствия потоков через боковые стороны ячейки.

Установление распределения потенциала $\varphi(x, y)$ для микрообластей гетерогенного материала, ограничиваемых пределами элементарных ячеек, путем традиционного решения дифференциальных уравнений переноса [13] затрудняется необходимостью сшивания решений на границах раздела частиц и матрицы [6]. В связи с этим перейдем к вариационной формулировке уравнений переноса [14], используя условие экстремальности функционала,

$$\chi = \int_{S_e} \sigma(\text{grad}\varphi)^2 dS. \quad (6)$$

Функцию $\varphi(x, y)$, минимизирующую величину χ , будем отыскивать методом конечных элементов [15]. С этой целью разобьем элементарную ячейку треугольными симплекс-элементами, аппроксимируя $\varphi(x, y)$ в пределах каждого из треугольников линейной зависимостью от координат. Совокупность значений потенциала $\{\varphi_j\}$ в узлах сетки, однозначно определяющую искомую аппроксимацию полевой функции, нетрудно установить в итоге известных в литературе преобразований. Алгоритм отыскания $\{\varphi_j\}$ был описан в работах [12, 16-18] (в последних трех подобным же методом исследовались явления пере конденсации летучих веществ).

Особенность расчета проводимостей рассматриваемых структур состоит в необходимости адаптировать сетку треугольных элементов к форме включений. Алгоритм адаптации состоял в следующем. Строилась равномерная сетка. Затем положение узлов, ближайших к границам включений, корректировалось так, чтобы эти узлы и стороны соответствующих элементарных треугольников легли на линию границы. Далее определялись номера элементов, лежащих либо в пределах включения, либо матрицы, и задавались их локальные проводимости.

Сформулированные выше положения были положены в основу программы для ЭВМ серии ИВМ РС, которая позволяла исследовать зависимости эффективной проводимости двумерных гетерогенных структур, строить картины токовых и изопотенциальных линий и анализировать пространственные распределения градиентов потенциала. При этом использовались сетки плотностью 50×100 разбиений. Погрешность определения величины проводимости, оцененная по описанной выше методике, не превышала 1%.

Влияние формы частиц на проводимость систем

Обсуждая результаты систематизации установленных в настоящей работе данных о проводимости различных структур, отметим прежде всего, что для всех исследованных систем выполняются соотношения взаимности Дыхне [10, 11, 19]:

$$\sigma_e \sigma_e^D = \sigma_m \sigma_i, \quad (7)$$

где σ_e^D — эффективная проводимость среды, получаемой из исходной циклической заменой материалов матрицы и включений: $\sigma_m \rightarrow \sigma_i$ и $\sigma_i \rightarrow \sigma_m$.

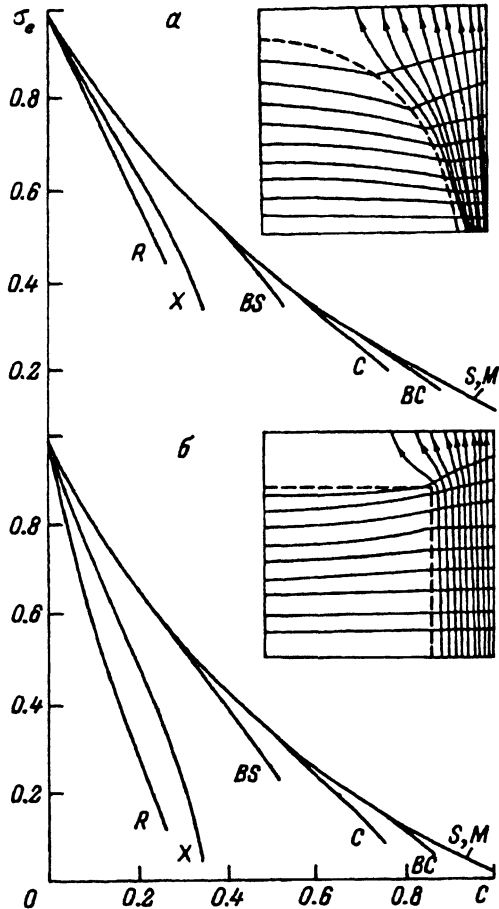


Рис. 2. Зависимости эффективной проводимости структур, показанных на рис. 1, от концентрации включений при $\sigma_i = 0.1$ (а) и 0.01 (б). M — Максвелловская зависимость. На вставках — схемы токовых (со стрелками) и изопотенциальных (без стрелок) линий структур C и S при $C = 0.6$ и $\sigma_i = 0.01$. Штриховая линия — контур включения.

В связи с этим далее обсуждаются лишь особенности процессов переноса в системах, в которых $\sigma_i < \sigma_m$.

На рис. 2, а представлены зависимости σ_e от содержания включений C , равного отношению суммы площадей “заштрихованной” фазы к общей площади системы, при $\sigma_i = 0.1$, $\sigma_m = 1$. Из рисунка видно, что проводимости структур S и C с квадратными и круглыми частицами отличаются не более чем на 1%, если $C < 0.7$. Для сравнения на рисунке приведены также зависимости, рассчитанные по формуле Максвелла (линия M), справедливой для разбавленных систем с круглыми включениями [5, с. 37],

$$\sigma_{Mx} = \sigma_m \left(1 - 2C(\sigma_m - \sigma_i) \right) / \left(\sigma_m + \sigma_i + C(\sigma_m - \sigma_i) \right). \quad (8)$$

Обращает внимание, что ход кривой Максвелла во всем изученном интервале значений C практически сливается с графиком зависимости

$\sigma_e(C)$ для квадратных включений. При $C = 0.3$ проводимости систем C , S и максвелловской составляют 0.606, 0.594 и 0.606, а при $C = 0.6$ равны 0.330, 0.337 и 0.341 соответственно. Уменьшение проводимости включений до 0.01 вызывает снижение σ_e , однако по-прежнему для систем с круглыми и квадратными частицами при $C < 0.7$ их эффективные кинетические коэффициенты остаются близкими по величине максвелловским (рис. 2, б). При $C = 0.3$ для C , S и максвелловской σ_e составляет 0.546, 0.527 и 0.547, а при $C = 0.6$ равно 0.241, 0.251 и 0.259 соответственно. Следует отметить, что в обсуждаемых условиях при $C < 0.55$ проводимость системы с круглыми включениями оказывается несколько выше, чем с квадратными.

Примером матричной системы, эффективная проводимость которой резко отличается от таковой для C , S и максвелловской, служит система X с крестообразными включениями. Охарактеризуем форму частиц геометрическим параметром ρ_X , равным отношению толщины образующих креста z к его длине h (рис. 1). На рис. 2, а, б представлены установленные в настоящей работе зависимости $\sigma_e(C)$ (кривые X) при $\rho_X = 0.2$ и σ_i , равных 0.1 и 0.01. В работе [8] было установлено, что если $\sigma_i = 0$ и $\rho_X = 0$, то кресты дают такой же вклад в эффективное сопротивление системы, как и непроводящие круги радиусом $R_{ef}^0 = h2^{-1/2}$. Из рис. 2 видно, что различие проводимостей структур с крестообразными и круглыми частицами увеличивается при росте концентрации включений. При этом можно заключить также, что эффективный радиус проводящего креста R_{ef} заметно отличается от R_{ef}^0 . Так, используя зависимости, представленные на рис. 2, нетрудно прийти к выводу, что если $\rho_X = 0.2$ и $\sigma_i = 0.1$, то отношение R_{ef}/R_{ef}^0 равно 1.12 и 1.26 при C , равном 0.1 и 0.35 соответственно. Если же $\sigma_i = 0.1$, то обсуждаемое отношение равно 1.24 и 1.41 соответственно. Таким образом, в отличие от ситуации, изучавшейся в [8], в рассматриваемых условиях эффективный радиус проводящего крестообразного препятствия R_{ef} зависит и от концентрации, и от проводимости частиц. Величина ρ_X также существенно влияет на эффективную проводимость системы X . На рис. 3 представлена зависимость σ_e от геометрического параметра, рассчитанная при $C = 0.5$ и $\sigma_i = 0.01$. Из рисунка видно, что в системе X увеличение длины образующей креста h (уменьшение ρ_X) приводит к резкому падению величины коэффициента переноса.

Важным геометрическим фактором матричной структуры является полидисперсность включений. Реальные матричные системы, как правило, не являются монодисперсными [20] вследствие статистического характера процесса их образования. В работе [21] устанавливались коэффициенты переноса для бидисперсной системы, содержащей квадратные области с нулевой проводимостью. Рассмотрим теперь влияние полидисперсности на величину эффективного коэффициента переноса среды с круглыми проводящими включениями. С этой целью обратимся к структуре BC на рис. 1. Охарактеризуем степень ее полидисперсности параметром $\rho_{BC} = R_2/R_1$, равным отношению радиусов частиц мелкой и крупной фракций. При этом значениям ρ_{BC} , равным 0 и 1, соответствуют монодисперсные структуры, отличающиеся друг от друга направлениями распространения потока относительно образующих их регулярной структуры. На рис. 3 представлены за-

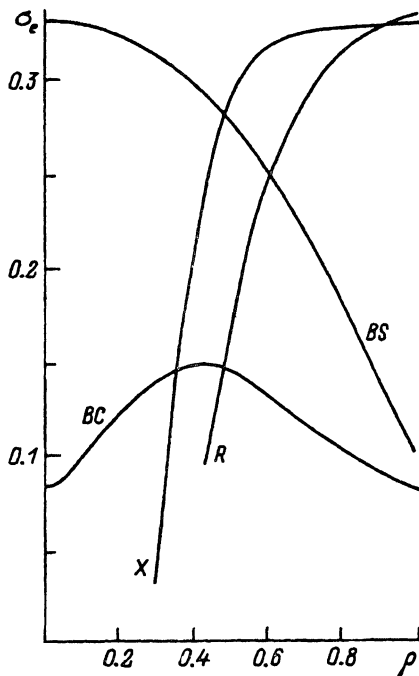


Рис. 3. Зависимости эффективной проводимости структур X , R , BC и BS от их геометрических параметров при $C = 0.6$ и $\sigma_i = 0.01$.

висимости σ_e бидисперсной системы от ρ_{BC} при $\sigma_i = 0.01$ и $C = 0.75$. Видно, что присутствие в системе мелкой фракции в целом увеличивает эффективную проводимость, при этом максимальное ее значение достигается при $\rho_{BC} = 0.4$. На рис. 2 приведены зависимости $\sigma_e(C)$ при $\rho_{BC} = 0.4$. Интересно отметить, что проводимость бидисперсной структуры с круглыми включениями оказывается ближе к значению σ_{Mx} идеальной максвелловской системы, чем монодисперсная.

Ситуация меняется при переходе к бидисперсной среде BS с квадратными включениями. Определим особенности ее геометрии параметром, равным отношению размеров частиц мелкой и крупной фракций $\rho_{BS} = a_2/a_1$. На рис. 2 кривыми BS представлены зависимости ее эффективной проводимости от концентрации при $\rho_{BS} = 0.2$. Из рис. 2 видно, что проводимость бидисперсной системы квадратных частиц заметно ниже, чем у монодисперсной структуры S . Из рис. 3 видно также, что проводимость системы квадратных частиц зависит от геометрического параметра более резко, чем σ_e системы круглых частиц.

Особенность процессов переноса в структуре R с кольцевыми включениями состоит в своеобразном экранировании части матричной фазы материалом включения. В той или иной степени подобное же экранирование имеет место и в ряде сред со взаимопроницающими проводящими компонентами. Охарактеризуем геометрические особенности подобной системы геометрическим параметром $\rho_R = (R_1 - R_2)/R_1$, где R_1 и R_2 — внешний и внутренний радиусы кольца соответственно. На рис. 2 показаны концентрационные зависимости σ_e среды R при $\rho_R = 0.2$. Из рисунка видно, что отклонение $\sigma_e(C)$ от максвел-

ловской зависимости у нее оказывается наиболее сильным в сравнении с иными рассмотренными выше структурами. Зависимость величины коэффициента переноса от геометрического параметра также весьма резкая. Таким образом, эффекты экранирования могут оказываться преобладающими в формировании процессов переноса в структурах со взаимопроникающими фазами.

Анализ особенности распространения потока

Представляет интерес обсудить наиболее существенные факторы, обуславливающие влияние формы частиц матричной системы на ее эффективную проводимость, а также причины близости значений эффективных проводимостей систем C и S и получаемых в рамках максвелловской модели.

Обратимся прежде всего к особенностям распределения тока и потенциала, характерным для структур с круглыми и квадратными частицами. На вставках к рис. 2 представлены картины токовых и изопотенциальных линий структур C и S при $C = 0.3$ и $\sigma_i = 0.01$. Из них видно, что пространственные распределения потенциала и тока для систем C и S значительно отличаются друг от друга и их визуальный анализ не позволяет объяснить близость друг другу значений их σ_e .

Проанализируем теперь степень неоднородности поля в обсуждаемых системах с помощью функции γ , характеризующей спектр значений градиентов потенциала,

$$\gamma(g) = \frac{1}{S_0} \frac{dS}{dg}, \quad (9)$$

где $g = \partial\varphi/\partial y$, S — сканируемая поверхность, S_0 — общая ее площадь (средний градиент в ячейке $\Delta\varphi/d$ принят равным 1).

Аппроксимируем $\gamma(g)$ гистограммой с шагом по g , равным Δg , при этом j -е ее значение определим следующим образом:

$$\gamma_j = \frac{1}{S_0} \int_{S_0} \alpha(g_j, \Delta g) dS. \quad (10)$$

Здесь функция α равна 1 при $g_j + \Delta g/2 \leq g \leq g_j - \Delta g/2$ и нулю вне этого интервала. Таким образом, γ_j равно доле сканируемой поверхности, в пределах которой градиент поля имеет величину, заключенную в указанном интервале значений g .

Как известно, максвелловская модель предполагает однородность поля внутри включения, т.е. в ее рамках $\gamma(g)$ описывается δ -функцией. Рассмотрим спектры градиента поля внутри включений обсуждаемых в настоящей работе матричных структур. При их расчете ограничимся сканированием поверхности проводящей системы лишь в пределах областей, занятых включениями.

На рис. 4 представлены спектры градиентов потенциала φ для различных структур, рассчитанные при шаге сканирования Δg , равном 0.01, концентрации $C = 0.6$, $\delta_i = 0.01$ и геометрических параметрах $\rho_X = 0.2$, $\rho_{BC} = 0.4$. Из рис. 4 видно, что эти спектры размыты и зачастую характеризуются тонкой структурой, зависящей как от формы

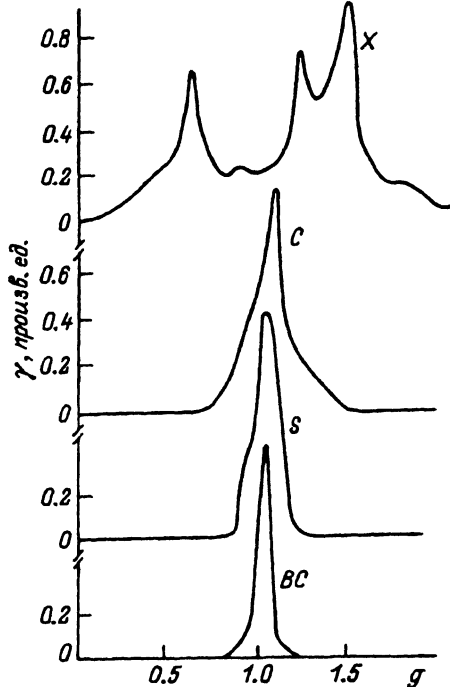


Рис. 4. Спектры градиентов потенциала внутри включений. Амплитуды распределений отнормированы на единицу.

включений, так и от их концентрации. При этом у бидисперсной системы BC в сравнении с остальными структурами спектр градиента наиболее приближен к форме, описываемой δ -функцией. Из рис. 2 видно, что и величина ее $\delta_e = 0.259$ наиболее близка к приведенному выше значению δ_{Mx} . Рост величин дисперсий значений γ , наблюдаемый при переходе к структурам S и C , коррелирует с увеличением величин их эффективных коэффициентов переноса. Развитой тонкой структурой $\gamma(g)$ системы с крестообразными частицами отвечает и достаточно низкая ее проводимость $\delta_e = 0.182$.

Анализ совокупности полученных в настоящей работе спектров привел к выводу, что чем ближе форма спектра к δ -функции, тем ближе соответствующее значение δ_e к величине, рассчитанной по формуле Максвелла. Систематизация результатов расчетов показала, что величина $|\delta_e - \delta_{Mx}|$ оказалась пропорциональной среднеквадратичному отклонению функции $\gamma(g)$ от ее среднего значения. Таким образом, можно сделать вывод, что преобладающей причиной изменения проводимостей обсуждаемых систем является взаимное возмущение полей внутри соседних включений. При этом в случае квадратных частиц это действие ослабляется благодаря формированию между частицами специфических токопроводящих коридоров с постоянной плотностью тока в них (вставка к рис. 2).

Выше рассматривались системы, характеризующиеся условием $\delta_i < \delta_m$. Особенности процессов переноса в системах с включениями, проводимость которых выше проводимости матрицы, также нетрудно установить, используя соотношения взаимности (7).

Из предшествующего обсуждения следует ряд выводов, которые могут быть полезны при анализе влияния формы частиц на проводимость двухфазных пленок. Эффективные коэффициенты переноса регулярных матричных структур с круглыми включениями отличаются от максвелловских значений не более чем на 2%, если концентрация включений не превышает 0.6, а в случае монодисперсной системы S с квадратными частицами — при любых концентрациях. Проводимость бидисперсной системы с круглыми включениями ближе к максвелловской, чем проводимость монодисперсной. В системе с квадратными областями, напротив, бидисперсность отклоняет величину эффективной проводимости системы от $\delta_{Mx}(C)$. Проводимости матричных систем с крестообразной формой частиц значительно отличаются от таковых с областями выпуклой формы. При этом величина эффективного радиуса крестообразных препятствий зависит от соотношения проводимостей матрицы и включения и от концентрации последних. Эффекты экранирования резко влияют на проводимость систем со взаимопроницаемыми компонентами.

Отметим также, что использование метода конечных элементов позволяет не только расширить круг исследуемых гетерогенных систем, но и позволит в дальнейшем проанализировать роль малоизученных факторов процессов переноса в гетерогенной среде: трансформации картины распространения потоков при установлении критических концентраций проводящих компонент пространственных особенностей диссипации энергии в гетерогенных резистивных пленках и закономерностей деградационных процессов в них; влияния стохастической дисперсии величин локальных проводимостей на величину коэффициента переноса; анизотропии проводимости, обусловленной структурой, и т.д. Обсуждению этих вопросов будут посвящены наши дальнейшие публикации.

Список литературы

- [1] *Мартюшов К.И., Зайцев Ю.В.* Технология производства резисторов. М.: Высшая школа, 1972. 312 с.
- [2] *Технология тонких пленок. Справочник / Под ред. Майссела. Л., Глэнга Р. М.: Сов. радио, 1977. Т. 1. 662 с.*
- [3] *Бабушкин Г.А.* Металлические композиты. М.: Металлургия, 1988. 320 с.
- [4] *Дульнев Г.Н.* Коэффициенты переноса в неоднородных средах. Л., 1979. 64 с.
- [5] *Митюшов Е.А., Гельд П.В., Адамеску Р.А.* Обобщенная проводимость и упругость макрооднородных гетерогенных материалов. М.: Металлургия, 1992. 145 с.
- [6] *Емец Ю.П.* Электрические характеристики композиционных материалов с регулярной структурой. Киев: Наукова думка, 1986. 192 с.
- [7] *Емец Ю.П., Обносов Ю.В.* // ПМТФ. 1990. № 1. С. 21-29.
- [8] *Балагуров Б.Я.* // ЖТФ. 1981. Т. 51. Вып. 6. С. 1146-1151.
- [9] *Гельд П.В., Митюшов Е.А.* // Неорган. материалы. 1992. Т. 28. № 8. С. 1589-1605.
- [10] *Дыгне А.М.* // ЖЭТФ. 1970. Т. 59. Вып. 1. С. 110-115.
- [11] *Балагуров Б.Я.* // ЖЭТФ. 1980. Т. 79. Вып. 4. С. 1561-1571.
- [12] *Гельд П.В., Сачков И.Н., Гофман А.Г.* // ДАН. 1990. Т. 325. № 3. С. 694-697.
- [13] *Буевич Ю.А., Корнеев Ю.А., Шелчкова И.Н.* // ИФЖ. 1976. Т. 30. № 6. С. 979-985.
- [14] *Мизлиин С.Г.* Вариационные методы в математической физике. М.: Наука, 1970. 512 с.

- [15] Сегерлинд Л. Применение метода конечных элементов. М.: Мир, 1979. 392 с.
- [16] Гельд П.В., Сачков И.Н. // ДАН. 1993. Т. 331. № 2. С. 170-172.
- [17] Сачков И.Н., Гельд П.В. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. Вып. 20. С. 16-19.
- [18] Гельд П.В., Сачков И.Н. // Неорганические материалы. 1994. Т. 30. № 3. С. 306-313.
- [19] Söderberg M., Grimvall G. // J. Appl. Phys. 1986. Vol. 59. N 1. P. 186-190.
- [20] Хейфец Л.И., Неймарк А.В. Многофазные процессы в пористых средах. М. Химия, 1982. 320 с.
- [21] Неймарк А.В. // ЖТФ. 1989. Т. 59. Вып. 6. С. 22-26.
-