

*В.А.ОГОРОДНИК, канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотр., Г.А.ГАЛИНА, науч. сотр.,
Г.И.КАЛЬНАЯ, канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотр.,
Н.М.ПРИЩЕПА, канд. техн. наук, доц.*

ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕМПЕРАТУРНОЙ И ЧАСТОТНОЙ ЗАВИСИМОСТЕЙ ЭЛЕКТРОФИЗИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ДИОКСИДА ЦЕРИЯ

Проведено экспериментальное исследование электрофизических свойств CeO_2 — температурных и частотных зависимостей удельной электропроводности, диэлектрической проницаемости и тангенса угла диэлектрических потерь, а также представлена интерпретация полученных результатов.

Известно, что CeO_2 — диэлектрик, имеющий большую статическую (около 20) и высокочастотную (3,6) диэлектрическую проницаемость. В силу этих особенностей, а также благодаря ряду других свойств диоксид церия является весьма перспективным материалом.

Некоторые электрофизические свойства CeO_2 исследовались в работах [1—8]. Установлено, что в температурном интервале 200—1000° С основными носителями заряда в CeO_2 являются поляроны малого радиуса (ПМР), которые образуются в результате взаимодействия $4f$ -электронов ионов Ce^{3+} с продольными оптическими колебаниями решетки. При этом наличие ионов Ce^{3+} в этом оксиде обеспечивается тем, что в термодинамическом стабильном состоянии он находится в слегка восстановленном состоянии (в формуле CeO_{2-x} $x \approx 0,004$). Однако в настоящее время отсутствуют экспериментальные сведения о зависимости диэлектрической проницаемости и диэлектрических потерь CeO_2 от температуры и частоты. Не выявлена также роль ПМР в этих процессах. Все это затрудняет внедрение диоксида церия в практику, а также уменьшает возможность направленного регулирования его свойств.

В данной работе проведено экспериментальное исследование электрофизических свойств CeO_2 (температурных и частотных зависимостей удельной электропроводности, диэлектрической проницаемости и тангенса угла диэлектрических потерь, а также представлена интерпретация полученных результатов).

Образцы CeO_2 были получены методом шликерного литья с последующим спеканием полученных образцов при 1360° С. Образцы имели форму дисков диаметром 10 мм и толщиной 1 мм.

Для исследования электрофизических свойств на основании образцов методом вакуумного термического испарения были сформированы электроды из хрома. Электросопротивление, емкость и тангенс угла диэлектрических потерь образцов измеряли с помощью термометра Е6-13 А и моста переменного тока Р-4053. Экспериментальные результаты рассчитывались по данным измерений пяти образцов.

Кристаллическую структуру образцов CeO_2 определяли с помощью дифрактометра ДРОН-2.0 с использованием Cu K -излучения. По полученным данным структура керамических образцов CeO_2 соответствовала кубической решетке типа CaF_2 . Результаты исследования структуры образцов CeO_2 приведены в табл. 1.

Таблица 1. Результаты рентгеноструктурных исследований CeO_2

hkl	(111)	(002)	(022)	(113)	(222)	(004)
a , нм	0,3129	0,2707	0,1911	0,1630	0,1562	0,1353
I/I_0 , %	100	25	80	70	10	10

Рассчитанное по этим данным значение постоянной решетки $a = (0,5411 \pm 0,0004)$ нм, что согласуется с литературными данными [1,2]. Типичные температурные зависимости удельной электропроводности σ показаны на рис. 1, а на рис. 2 представлены зависимости диэлектрической проницаемости ϵ (кривые 3, 4) и тангенса угла диэлектрических потерь (кривые 1, 2) от температуры на частотах 10^3 Гц (2, 3) и 10^4 Гц (1, 4).

Из рис. 1 следует, что на зависимости $\ln(\sigma T)$ от $1/T$ наблюдаются три линейных участка, в пределах которых зависимость $\sigma(T)$ описывается выражением

$$\sigma = \frac{A}{T} \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right), \quad (1)$$

где A — предэкспоненциальный множитель; E_a — энергия активации.

Результаты определения параметров A и E_a для трех температурных интервалов приведены в табл. 2.

Таблица 2. Расчет постоянной A и энергии активации E_a CeO_2

Температурный интервал, К	E_a , эВ	A , $\text{Ом}^{-1} \cdot \text{м}^{-1} \cdot \text{К}$
400—500	$0,27 \pm 0,04$	$(0,61 \pm 0,33) \cdot 10^{-3}$
500—660	$0,74 \pm 0,04$	$(0,15 \pm 0,07) \cdot 10^2$
660—910	$1,23 \pm 0,03$	$(0,39 \pm 0,35) \cdot 10^4$

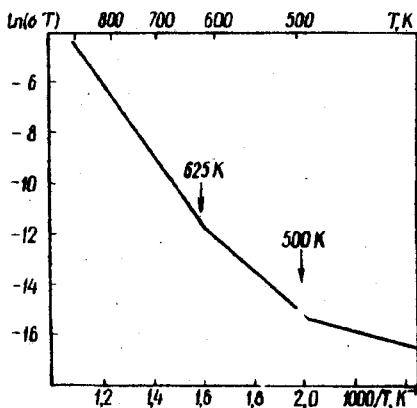


Рис. 1

Полученные значения хорошо согласуются с имеющимися литературными данными для монокристаллических и керамических образцов CeO_2 [2, 5].

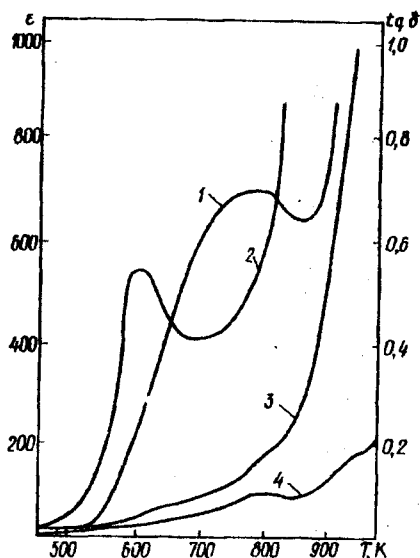


Рис. 2

Диэлектрическая проницаемость CeO_2 в интервале 300—500 К не зависит от температуры и равна $\epsilon = 20$ (рис. 2), что близко к данным работ [1, 2, 6], полученным при комнатной температуре. При дальнейшем увеличении температуры наблюдается значительный рост диэлектрической проницаемости. На зависимости $\epsilon(T)$ можно выделить два температурных интервала, где происходит увеличение ϵ . На частоте 10^3 Гц эти интервалы составляют 500 — 630 К и 700 — 900, а на частоте 10^4 Гц — 500 — 700 К и 840 — 950 К. Тангенс угла диэлектрических потерь (рис. 2) в интервалах 300—450 К (10^3 Гц) и 300 — 500 К (10^4 Гц) не зависит от

температуры. Дальнейшее повышение температуры приводит к резкому увеличению $\text{tg} \delta$. При этом на температурной зависимости наблюдаются ярко выраженные максимум и минимум, положение которых зависит от частоты. На частоте 10^3 Гц максимум и минимум наблюдаются соответственно в точках 593 К и 678 К, а на частоте 10^4 — в точках 755 и 833 К.

Из представленных данных следует, что в CeO_2 при температуре выше 450—500 К существует дополнительный релаксационный механизм поляризации. Принимая во внимание, что в интервале 300—900 К электропроводность CeO_2 обусловлена ПМР [5], можно предположить, что дополнительная поляризация также обусловлена ПМР. При этом вклад ПМР в поляризацию можно представить аналогичным механизму поляризации междоузельных ионов по Сканави [7]. При прыжковом характере миграции ПМР число их перескоков против поля больше числа перескоков в направлении поля. При этом каждые два сечения, проходящие через ближайшие узлы локализации ПМР перпендикулярно направлению поля, можно рассматривать как некие «квазидиполи», обладающие дипольным моментом. Наличие двух участков резкого роста ϵ с температурой и двух максимумов на зависимости $\text{tg} \delta(T)$ дает основание предположить существование ПМР, характеризующихся двумя значениями энергии активации.

При существовании одного механизма поляризации $\operatorname{tg} \delta$ определяется выражением [12]

$$\operatorname{tg} \delta = \frac{\sigma + \epsilon_0(\epsilon - \epsilon_\infty) \omega^2 \tau / (1 + \omega^2 \tau^2)}{\epsilon_0 \epsilon_\infty \omega + \epsilon_0(\epsilon - \epsilon_\infty) \omega / (1 + \omega^2 \tau^2)}, \quad (2)$$

где ϵ_0 — электрическая постоянная; ϵ и ϵ_∞ — стационарная и высоко-частотная диэлектрические проницаемости; ω — круговая частота; τ — время релаксации.

Это уравнение мы использовали для расчета времени релаксации предложенного (поляронно-релаксационного) механизма поляризации, используя экспериментальные значения σ , ϵ и $\operatorname{tg} \delta$ для ряда точек (через 20 К) температурного интервала.

Результаты расчета представлены на рис. 3, где прямая 1 соответствует частоте 10^3 Гц, а 2 — 10^4 Гц. Видно, что для каждой частоты можно выделить участок экспоненциальной зависимости от температуры:

$$\tau = \tau_0 \exp [E_a / (kT)]. \quad (3)$$

Значения энергии активации E_a и постоянной τ_0 , определенные из рис. 3, оказались следующими: на частоте 10^3 Гц $E_a = 0,23$ эВ и $\tau_0 = 1,0 \cdot 10^{-6}$ с, а на частоте 10^4 Гц $E_a = 0,60$ эВ и $\tau_0 = 0,3 \cdot 10^{-8}$ с. Полученные таким образом значения E_a коррелируют с соответствующими значениями энергии активации (0,27 и 0,74 эВ), определенными по измерениям электропроводности (см. табл. 2). Этот факт подтверждает выдвинутое здесь предположение о вкладе ПМР в поляризуемость CeO_2 .

Таким образом, на основании полученных результатов можно сделать вывод о том, что при температуре, превышающей 550—600 К, наблюдается резкое увеличение диэлектрической проницаемости CeO_2 , обусловленное вкладом поляронов малого радиуса в общую поляризуемость оксида. Поляризуемость поляронов малого радиуса можно отнести к релаксационному типу, характеризуемому двумя значениями времени релаксации (в случае CeO_2).

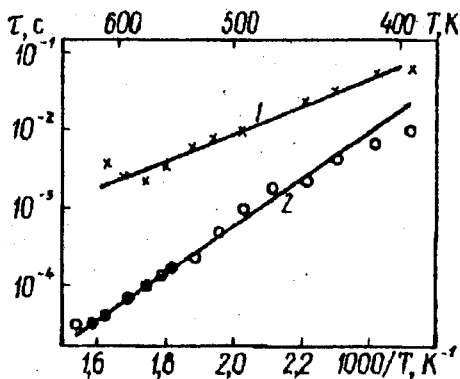


Рис. 3

Список использованной литературы

1. Бацанов С.С., Дулепов Е.В. Диэлектрические проницаемости и заряды атомов в окислах редкоземельных элементов // Физика твердого тела. 1964. Т. 7, вып. 4, С. 1239—1241.
2. Богородицкий Н.П., Пасынков В.В., Базили Р.Р., Волокобинский Ю.М. Электрические свойства окислов редкоземельных элементов // Докл. АН СССР. 1964. Т. 160, № 3. С. 578—582.
3. Самсонов Г.В., Гильман И.Я., Андреева А.Ф. Получение и исследование физических свойств тонких пленок окислов редкоземельных металлов // Изв. АН СССР. Сер. Неорганич. материалы. 1975. Т. 2, № 7. С. 1645—1648.
4. Гильман И.Я. Исследование условий получения и физических свойств пленок окислов лантаноидов: Автореф. дис. ... канд. техн. наук. К., 1974. 21 с.
5. Иоффе В.А. Состояние примесей и электрические свойства некоторых оксидов переходных элементов: Автореф. дис. ... д-ра физ.-мат. наук. Л., 1964. 68 с.
6. Самсонов Г.В., Орешкин П.Т., Перельгин А.И. и др. Электрические свойства пленок окислов РЭМ в структурах металл—диэлектрик—металл // Получение и свойства тонких пленок. К., 1974. Вып. 2. С. 20—24.
7. Сканави Г.Н. Физика диэлектриков (область слабых полей). М.; Л., 1949. 330 с.
8. Орешкин П.Т. Физика полупроводников и диэлектриков. М., 1977. 378 с.

Поступила в редколлегию 19.03.92

УДК 658.512.011

*В.П. ГОНДЮЛ, канд. техн. наук, проф.,
И.О. ТИХОМИРОВА, асп.*

КОНЦЕПЦИЯ РАЗВИТИЯ САПР КОНСТРУКЦИЙ РЭС НА ОСНОВЕ ИНТЕЛЛЕКТУАЛИЗАЦИИ СИСТЕМЫ

Представлена концепция развития САПР конструкций РЭС на основе интеллектуализации системы. Предложено создавать САПР, объединяющие проектирующие подсистемы и экспертные надстройки к ним. Проанализированы требования, обусловленные использованием средств искусственного интеллекта. Рассмотрены новые возможности построения САПР и качественных изменений в организации процесса проектирования.

Развитие систем автоматизированного проектирования, связанное с совершенствованием математического, программного, технического обеспечения, с одной стороны, и резким усложнением информационной емкости моделей современных элементов и конструкций РЭС — с другой, сдерживается тем, что процесс проектирования управляется конструктором—пользователем САПР, который, опираясь на свой профессиональный опыт и интуицию, оценивает ход и результаты решения на каждом из этапов процесса проектирования, обобщает их и делает выводы о целесообразности дальнейших действий. Однако пользователь САПР не всегда может принять оптимальное решение в силу недостатка опыта, сложности используемых информационных моделей объектов, незнания свойств и особенностей проектирующих процедур.

Качественный скачок в развитии САПР возможен путем адаптации используемых проектирующих модулей к конкретной информационно-вычислительной обстановке, а значит — путем разработки средств управления процессом проектирования.