

金属网格-透明导电氧化物复合型 透明电极的瑞利分析和仿真*

丁怡洋¹⁾ 邹帅¹⁾²⁾ 孙华^{1)†} 苏晓东^{1)‡}

1) (苏州大学物理科学与技术学院, 江苏省薄膜材料重点实验室, 苏州 215006)

2) (江苏省先进负碳技术重点实验室, 苏州 215123)

(2024年2月2日收到; 2024年5月11日收到修改稿)

以氧化铟锡 (indium tin oxide, ITO) 为代表的透明导电氧化物 (transparent conducting oxide, TCO) 在当前光电器件中的重要性日益增长. 通过在 TCO 中引入金属网格构成复合电极, 可以在保持良好透明性的前提下有效提升电学性能, 同时降低对铟的需求量, 并为可穿戴设备所需的柔性电极提供可能方案. 对此类电极的电学性能分析, 如复合电极方阻随金属网格结构参数的变化, 可为电极设计与制备提供基本的出发点, 但相关理论尚十分缺乏. 本文针对典型的方孔方格型金属网格-TCO 复合电极, 分别展开基于瑞利模型和基于有限元仿真的电学性能分析. 结果表明, 孔型近似导致的金属通道显著畸变是复合电极的电学计算中瑞利模型在中高开口率下失效的主要原因. 据此, 我们采用格型修正, 通过提升瑞利模型中的原胞外边界对称性来改善金属通道的畸变. 与电极仿真的对比表明, 修正后瑞利模型的适用范围明显扩大, 其结果可与实验数据很好地拟合, 为此类复合透明电极的电学数据分析与结构设计提供了简洁高效的理论工具.

关键词: 透明导电体, 金属网格电极, 复合介质, 有限元仿真

PACS: 68.65.-k, 73.40.Vz, 88.40.fc

DOI: 10.7498/aps.73.20240230

1 引言

透明导电电极是光电器件的重要组成部分, 被广泛应用于液晶显示器、触摸屏、LED 和光伏器件等诸多领域^[1-4]. 目前产业上最常用的透明导电电极是以氧化铟锡 (indium tin oxide, ITO) 为代表的透明导电氧化物 (transparent conducting oxide, TCO) 薄膜^[5,6]. 从技术应用的角度看, TCO 材料不仅具备良好的电导率和透光率, 同时还具有化学稳定性好、制造成本低、防腐蚀性好等优点. 但另一方面, 相关元素 (比如 ITO 中用到的铟) 的储量

问题始终影响着透明导电电极技术进一步的产业化扩张. 同时, TCO 材料的脆性令其无法满足新兴柔性电子设备的需求^[7]. 因此, 寻找新的透明电极材料及制备技术以替代传统的 ITO 薄膜是当前此领域中的重要问题.

在 TCO 薄膜中引入金属薄膜制成 TCO/纳米金属膜/TCO 三明治结构 (图 1(a)) 是被广泛研究的一种复合透明电极方案^[7-12]. 金属纳米薄膜的添加, 有助于提升复合电极的导电性, 同时减少对 TCO 中稀有元素的依赖. 但为了保证电极的透明性及良好的导电性, 金属的厚度通常需要控制在 10—15 nm^[13], 过厚的金属膜层会严重降低复合电

* 国家自然科学基金 (批准号: 52202276)、江苏省高等学校自然科学基金项目 (批准号: 22KJB480010)、江苏省高校优势学科建设工程项目 (PAPD) 和苏州市科技计划 (批准号: SYC2022041) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: hsun@suda.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: xdsu@suda.edu.cn

极的透光率, 而低于 10 nm 的金属薄膜往往生成质量过差, 形成不连续的岛屿状结构, 对电极的方阻和透光率同时造成负面影响.

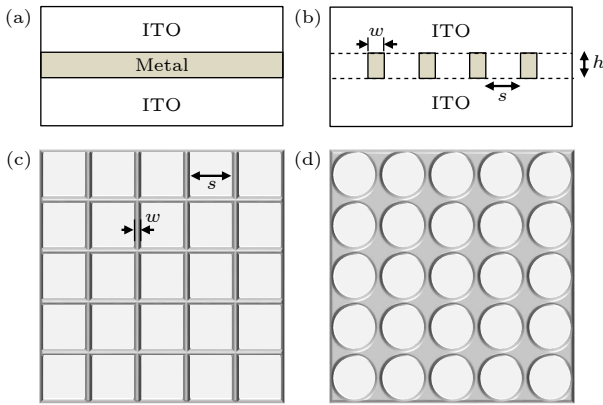


图 1 (a) TCO/纳米金属膜/TCO 三明治结构示意图; (b) TCO/金属网格/TCO 复合电极结构示意图; (c) 典型的方格方孔型金属网格结构; (d) 典型的二维瑞利复合介质结构, w 为金属网格的线宽, s 为线间距, h 为线高
Fig. 1. (a) Scheme of the TCO/metal-nanofilm/TCO sandwich structure; (b) scheme of the TCO/metal-mesh/TCO composite electrode structure; (c) typical structure of a metal mesh with bi-periodic square order; (d) typical structure of the two-dimensional Rayleigh composite, w is line-width of the metal mesh, s is line spacing; h is line height.

另一种在 TCO 薄膜电极中引入金属的方式是在 TCO 中嵌入不同形态不同材料的金属网格(图 1(b))^[14-21]. 图 1(c) 给出了一个典型的用于透明电极的金属网格构型, 其中金属线宽 w , 线间距 s (指线间空隙距离), 线高 h , 网格整体呈现规则方格状, 方型开口所占面积比为开口率 $p = s^2/(w+s)^2$. 与常见的 TCO/纳米金属膜/TCO 三明治结构相比, 金属网格的高开口率意味着复合电极透光性的提升, 同时还为电极带来额外的柔性^[16,17]. 事实上, 金属网格型透明电极目前被认为是柔性透明电极最有前途的候选材料^[18], 可通过金属网格与各种透明导电材料的适当复合, 实现电学、光学、力学等性能之间的平衡与优化, 具有良好的可调性与设计空间. 除了如图 1(c) 所示的最典型的方格方孔型规则网格, 在透明电极领域中被广泛研究的各种金属网格还包括石墨烯蜂窝网格、纳米线连通而成的逾渗网格、不规则多边形构成的裂纹网格、具有分形结构的叶脉网络以及由不同金属网格复合而成的杂化网格等^[3].

相对于活跃的实验与材料研究, 金属网格-TCO 复合电极的相关理论分析却较为缺乏. 尤其

是电学性能方面, 目前大多数研究或直接基于仿真结果, 或采用 1 维电路简化结果 $\rho \approx \rho_m l/w$ ^[21], 其中 ρ_m 为金属线电阻率, w 为金属线宽, l 为网格周期, 作为整个网格的近似, 而后者只在超高开口率 $p \rightarrow 1$ 的传统金属网格中成立. 合适的开口率大小是优化电极的透光性与导电性的重要因素. 在较早的金属网格电极研究中, 金属线的高度通常在微米级以上, 这意味着金属所占区域有严重的遮光效应. 为保证电极有足够的透光性, 此类金属网格的开口率通常要高达 90% 以上^[16,19]. 但随着技术的发展, 特别是对于嵌入 TCO 的金属网格, 金属线高降低到纳米尺度, 这种超薄金属网格的最优开口率往往可以低于 90%. 如 Lee 等^[14,15] 制备了 ITO (47 nm)/Ag 网格 (10 nm)/ITO(47 nm) 三明治结构, 发现当引入开口率为 85% 的银网格后, 复合电极的透光率与单层 ITO 电极几乎一致, 而方阻则显著降低. 而通过设计具有陷光效应的金属线阵列, 可在金属覆盖率达到 25%(相应于开口率 75%) 实现超过 90% 的透光率^[20]. 技术发展带来的另一个问题是纳米尺度下金属电阻率的变化对电极电学性能的影响. 对于比较简单的 TCO/纳米金属膜/TCO 三明治结构, 可通过多层膜方阻的并联模型提取金属膜层的电阻率, 分析其随厚度的变化^[22]. 而对于嵌入金属网格的复合电极, 尚缺乏类似的简洁有效的近似模型, 用以分析复合电极的整体电学性能与各组分电阻率及复合结构之间的关系.

解析求解的困难是造成相关理论缺乏的一个重要原因. 金属网格对电极的影响本质上属于一个经典的二维二相复合介质运输模型, 其中金属区域作为连续相存在, 而开孔区域内的介质以离散的阵列相形式存在. 对此类模型的理论计算最早可追溯到 1892 年瑞利的奠基性工作^[23], 此后在长期的发展中被推广到不同的维度、格子、性能参数, 无序复合等各种情形^[24-28]. 类似图 1(c) 所示的典型金属网格具有方格方孔的形态, 在复合介质理论中被称为“双周期方型格”(bi-periodic square lattice)^[29,30]. 数学上已经证明, 此形态下复合介质的有效电导率在一般条件下不存在解析解, 唯一的解析结果只成立于开口率 $p = 0.25$ 时^[29]. 最近, Guralnik 等^[30] 通过与有限元仿真结果的对比, 对此类具有方格方孔形态的复合介质建立了包含经验参数的唯象模型, 实现了对复合介质电导率随开口率与组分电阻参数变化曲线的高精度拟合. 然而, 唯象模型的构建

缺乏足够的物理基础, 经验参数的调用方式繁琐, 且对构型变化的适应性差. 文献 [30] 的计算表明, 当所研究体系的孔型边界稍偏离严格的方型后, 模型计算结果的误差从 0.1% 以下迅速上升到 10% 以上. 这使其很难应用于需要讨论网格形变问题的柔性电极分析.

是否可为如图 1 所示的典型金属网格-TCO 复合电极建立基本的电传输模型, 既为实验设计与数据分析提供简洁有效的计算工具, 又具备足够的物理基础来探究影响电极性能的关键因素与底层机制? 这是本文研究的主要动机. 我们提出的方案是采用经典的二维瑞利模型来近似描述金属网格的输运性质. 图 1(d) 给出了复合介质二维方格瑞利模型的构型特征, 最早被瑞利用于研究均匀背景中嵌入无限长圆柱阵列后复合介质的输运性质 [23]. 若要将此模型应用于金属网格-TCO 复合电极, 必须分析处理两个主要近似: 1) “孔型近似”, 与图 1(c) 的方格方孔金属网格构型相比, 采用瑞利模型后网格中的方孔被近似用圆孔替代, 这导致两者的主要电流通道的几何形状上存在明显差异, 必然对电传输的计算结果带来偏差; 2) “截断近似”, 瑞利模型给出的复合电导率表达式中包含开口率的幂函数级数, 在实际计算中需要对此级数采用截断近似 [24]. 而如前所述, 复合透明电极的金属网络开口率至少在中高区域. 因此, 有必要考察截断近似产生的高阶误差对此开口率范围内复合电极方阻计算结果的影响.

本文针对典型的方孔方格型金属网格-TCO 复合电极, 分别展开基于瑞利模型的电学性能分析和基于有限元仿真的数值计算. 首先简要回顾了瑞利模型应用于此类电极结构时的要点, 并结合仿真得到的金属通道电流分布特征, 分析了瑞利模型应用过程中孔型近似与截断近似对计算结果的不同影响. 结果表明, 孔型近似导致的金属通道显著畸变是瑞利模型在中高开口率失效的主要原因. 据此, 我们采用格型修正, 通过提升瑞利模型中的原胞外边界对称性来改善金属通道的畸变. 此修正下, 方孔方格型金属网格被映射为六角格瑞利模型, 修正后的瑞利模型适用范围被明显扩大, 与单层金属网格-TCO 复合电极结构和三明治金属网格-TCO 复合电极结构的电学仿真结果在中高开口率范围内均能很好地吻合, 显示出该模型对此类电极性能提

高与结构设计的应用价值. 在第 2 节中, 首先为单层金属网格-TCO 复合电极建立一个基本的瑞利模型, 给出其分析过程的简要步骤, 并整理得到单层有效电阻率的近似展开式. 第 3 节中针对复合电极的典型结构进行有限元仿真计算, 并据此对瑞利模型提出修正方案, 对比修正前后瑞利模型的适用范围. 第 4 节中, 修正后的瑞利模型被应用于实验数据的拟合, 分析复合电极方阻与电极结构参数的关系, 并对比了本文瑞利近似与其他近似模型.

2 复合电极的瑞利模型

对于图 1 所示的典型金属网格-TCO 薄膜复合电极, 首先需要针对其金属网格所在单层建立相应的瑞利模型, 并基于此计算出该层的有效电导率及整体结构的总方阻. 设金属的电阻率 ρ_1 , 其嵌入的背景 TCO 材料电阻率为 ρ_2 ; 网格线宽为 w , 网格周期边长为 l , 则对于图 1(c) 所示的方格方孔网格, 其开口率 $p = (l - w)^2 / l^2$. 瑞利近似下, 该网格及其所在单层被映射为一个图 2 所示的二元复合介质平面, 其中, 作为背景的“连续相”对应于金属网格, 具有电阻率 ρ_1 和面积比 $(1 - p)$; 做规则方形阵列排布的“分立相”对应于网格开口区内的 TCO 材料, 具有电阻率 ρ_2 和面积比 p .

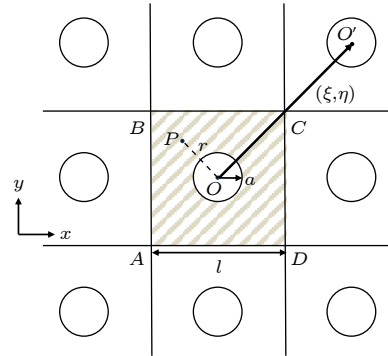


图 2 二维瑞利复合介质模型的方形阵列及计算原胞
Fig. 2. The square array with the cell structure chosen for calculation in a 2D Rayleigh composite model.

此类问题已经过长期的修正与推广 [24-28], 然而, 为了更清楚地阐明将此模型应用于金属网格-TCO 复合电极过程中引入的近似对计算结果的影响, 有必要先简要回顾该模型的分析与计算要点.

首先设外加电场方向沿 x 轴. 任选阵列中的一个圆心 O 作为原点建立极坐标系, 任一点 P 处的电势 $V(r, \theta)$ 满足 Laplace 方程. 利用阵列关于

$\theta = 0$ 和 $\theta = \pi/2$ 的对称性, 可写出 P 点电势的级数展开式:

$$V = A_0 + \sum_{k=1}^{\infty} (A_{2k-1}r + B_{2k-1}r^{-(2k-1)}) \times \cos[(2k-1)\theta], \quad r < a, \quad (1)$$

$$V' = C_0 + \sum_{k=1}^{\infty} C_{2k-1}r^{2k-1} \cos[(2k-1)\theta], \quad r > a, \quad (2)$$

其中, a 为圆孔半径, 由金属网络的开口率决定: $a/l = \sqrt{p/\pi}$. 将圆周 $r = a$ 上的电势边界条件 $V' = V$, $v \frac{dV'}{dr} = \frac{dV}{dr}$ 代入 (2) 式, 可得到待定系数 A_n 和 B_n 之间的关系式:

$$A_n = a^{-2n} \nu' B_n, \quad (3)$$

其中, $\nu' = (1 + \nu)/(1 - \nu)$, 而 $\nu = \rho_1/\rho_2$ 是两相的电阻率之比.

随后, 选择以 O 为中心的原胞 $ABCD$ 为分析对象, 设该原胞两侧的电势差为 V_0 , 流入的电流为 I_e , $E_0 = V_0/l$ 即所施加的外场大小. 根据体系的对称性易知, 与外加电场方向垂直的原胞边界 AB 与 CD 为等势线, 与外加电场方向平行的原胞边界 BC 和 AD 上电流法向分量为零. 据此特征, 将格林定理应用于图 2 中阴影区的边界 $\partial\Omega$ 得: $\int_{\partial\Omega} \left(U \frac{dV}{dn} - V \frac{dU}{dn} \right) ds = 0$, 其中 $U = r \cos\theta$, V 即 (1) 式的电势展开式. 简便起见可假设 $\sigma_1 = 1$, 代入整理后得到体系的有效电导率:

$$\sigma_{\text{eff}} = 1 - \frac{2\pi B_1}{l^2 E_0}. \quad (4)$$

即有效电导率的大小由 (1) 式中的系数 B_1 与外场 E_0 的比值决定.

为解出 B_1 , 需要进一步利用圆孔阵列的平移对称性. 选择另一个圆心 O' 建立新的极坐标系 (r', θ') . 分析 (1) 式中各展开项的物理起源, B 系数项来源于中央圆孔 O 的贡献, 则转换到 O' 坐标系后, 新的中央圆孔对 V 的贡献为

$$\sum_{k=1}^{\infty} B_{2k-1} r'^{-(2k-1)} \cos[(2k-1)\theta'].$$

由于平移对称性, 系数 B_{2k-1} 不随坐标系的改变而变化. 由此得到:

$$\begin{aligned} & A_0 + (A_1 - E_0)(x + iy) + A_3(x + iy)^3 + \dots \\ &= \sum_{(x', y') \neq (0, 0)} \{ B_1(x' + iy')^{-1} + B_3(x' + iy')^{-3} \\ &+ \dots \}, \end{aligned} \quad (5)$$

等号两边取实部后均是 P 点电势中除了 O 圆孔贡献外所有其他圆孔的总贡献, 其中, (x, y) 和 (x', y') 是 P 点在两个坐标系中的直角坐标: $x' = x - \xi$, $y' = y - \eta$, ξ, η 为各个圆心的直角坐标.

(5) 式整理后得到关于 $\{A_m, B_m\}$ 的一系列方程组, 与 (3) 式联立后最终得到关于 $\{B_m\}$ 的线性方程组:

$$\sum_{m=1, 3, 5, \dots} \Phi_{nm} B_m, \quad n = 1, 3, 5, \dots, \quad (6)$$

其中, 系数矩阵元

$$\Phi_{nm} = C_{m+n+1}^n \Theta_{m+n} + \nu' a^{-2n} \delta_{mn}, \quad (7)$$

以及

$$H_n = E_0 \delta_{n1}, \quad (8)$$

(7) 式中, δ_{mn} 为 Kronecker delta 符号, $C_m^n = \frac{m \cdot (m-1) \cdot \dots \cdot (m-n+1)}{n!}$ 为组合符号, Θ_m 为阵列的 m 阶格点求和:

$$\Theta_m = \sum_{(\xi, \eta) \neq (0, 0)} (\xi + i\eta)^{-m}. \quad (9)$$

对于正方格子, 有

$$\Theta_m = S_m l^{-m}, \quad (10)$$

其参数 $S_m = \sum_{(k, s) \neq (0, 0)} (k + is)^{-m}$, (k, s) 对所有整数求和, 只排除 $(0, 0)$.

通过求解 (6) 式得到 B_1/E_0 , 代入 (4) 式后即得到体系的有效电导率. 其解的形式为

$$\sigma_{\text{eff}} = 1 - \frac{2p}{F_{\nu'}(p)}, \quad (11)$$

其中, 分母 $F_{\nu'}(p)$ 具有关于 $\delta_p = (p/\pi)^4$ 的级数展开式的形式:

$$F_{\nu'}(p) = \nu' + p - \frac{3S_4^2}{\nu'} \delta_p - \frac{7S_8^2}{\nu'} \delta_p^2 - O(\delta_p^3). \quad (12)$$

若对该级数保留到 δ_p^2 项, 并代入所涉及的参数数值结果 $S_4 = 3.15121$, $S_8 = 4.25577$, 即可得常用的方格瑞利近似表达式^[24]:

$$\sigma_{\text{eff}} = 1 - \frac{2p}{\nu' + p - \frac{0.305827}{\nu'} p^4 - \frac{0.013362}{\nu'} p^8}. \quad (13)$$

相较于常用的 (13) 式, (11) 式和 (12) 式可以更清晰地展现出瑞利近似结果的级数收敛特性. (12) 式明确表明, 有效电导率的近似结果取决于 $\delta_p = (p/\pi)^4$ 的高阶项 (其指数上的 4 来源于正方格子的四重旋转对称性). 这意味着, 即使开口率达

到 $p = 0.7$ 这样的中高程度, 瑞利近似中也只有微小的展开小量 $\delta_p \approx 0.002$. 因此, 可以预期 (12) 式在大部分的开口率范围内都能快速收敛, δ_p 低阶近似已经可以满足需求. 更高阶的近似结果可通过对方程组 (6) 的高阶截断近似获得. 设 N 为方程组 (6) 的截断阶数, 即对方程组做截断近似后的方程数目, 则 $N = 4$ 对应于 (12) 式中 δ_p 的二阶近似. 在第 3 节的计算结果中, 我们将给出不同开口率 $N > 4$ 后的快速收敛.

瑞利模型的结果同时还展现了组分材料的电阻失配对体系有效电导率的影响. 出现在展开系数分母上的 $\nu' = (1 + \nu)/(1 - \nu)$ 意味着, 若组分电阻率十分接近 ($\nu = \rho_1/\rho_2 \rightarrow 1$, $\nu' \rightarrow \infty$), 则各阶 w 项的贡献极小; 而随着组分电阻率失配程度增大 ($\nu \rightarrow 0$, $\nu' \rightarrow 1$ 或 $\nu \rightarrow \infty$, $\nu' \rightarrow -1$), δ_p 项的贡献也相应增加, 这意味着高失配的组分电阻率会使整个体系的有效电导率随开口率的变化曲线呈现出更复杂的高阶非线性. 在下文中, 我们将针对金属网格-ITO 复合电极中采用的典型材料特性与结构特性, 通过与仿真结果对比来验证上述瑞利模型结果的有效性及其修正可能.

3 有限元仿真和模型修正

首先采用商业有限元仿真软件 COMSOL 4.3 的基本模块, 对图 1(c) 所示的嵌入 TCO 的方孔金属方格单层电导率进行仿真计算. 设所需计算的金属网格结构参数为金属线宽 w , 线间距为 s , 开口率网格的开口率 $p = s^2/(w + s)^2$, 金属线纵横比 (线高/线宽) 为 c , 金属材料及 TCO 材料的电阻率分别为 σ_m 和 σ_{TCO} . 图 3 所示的计算区域对应于整个格子中的一个单位原胞, 其中心方形区域设置电导率参数 $\sigma_2 = \sigma_{\text{TCO}}$, 边长为 d ; 边框区域设置电导率参数 $\sigma_1 = \sigma_m$, 边长为 $l = s + w$, 整个区域的层厚为 $h = cw$. 整个区域设置 Laplace 方程计算电势: $\nabla^2 V = 0$, 并根据格子的周期性与对称性, 对 x 方向上的两个界面边界条件分别应用等势条件 $V = V_A$ 和 $V = V_B$; 其他方向的界面上采用零通量边界条件 $\mathbf{n} \cdot \mathbf{j} = 0$, 其中 \mathbf{n} 为边界法向单位矢量, \mathbf{j} 为电流密度矢量.

上述微分方程及其边界条件可在著名的有限元仿真软件 COMSOL Multiphysics 的基本模块中实现设置及求解. 在我们的仿真过程中采用了

COMSOL 内设泊松方程 $\nabla \cdot (-c\nabla u) = f$, 其中待求解的标量函数 u 对应模型中的电势 V , 方程系数 c 对应求解区域内的组分电导率, f 设为 0 以实现 Laplace 方程. 划分有限元网格 (图 3(b)) 后采用 COMSOL 内设的静态求解器 (stationary solver) 解出电势分布函数 $V(x, y, z)$, 狭窄通道内控制网格层数至少 4 层, 计算自由度在 $4 \times 10^4 - 10 \times 10^4$ 之间. 空间各处电流密度矢量可由 $\mathbf{j} = \sigma \cdot \mathbf{E} = \sigma \cdot (-\nabla V)$ 推算得到. 随后通过对电流密度的面积分及计入尺寸参数后可得到有效电导率的计算表达式:

$$\sigma_{\text{eff}} = \frac{1}{h \cdot V_0} \int j \cdot dS,$$

其中 $\int j \cdot dS$ 是电流密度在等势面 V_a 上的面积分, 即流入该侧面的电流, $V_0 = V_A - V_B$ 为施加于两侧的电势.

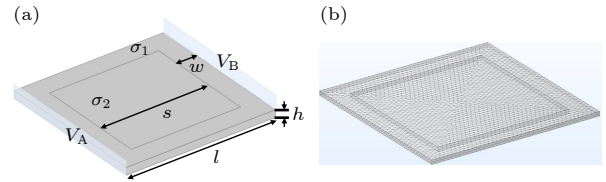


图 3 嵌入 TCO 的金属网格单层的仿真设置 (a) 原胞结构及相关参数; (b) 有限元网格划分

Fig. 3. The simulation settings of a single layer of metal mesh embedded in TCO: (a) The cell structure and relevant parameters; (b) finite element meshing.

图 4(a) 中给出了该仿真计算的结果 (三角点) 与方格瑞利模型的 δ_p 二阶近似 (黑色曲线) 的对比, 所采用的材料电阻率参数及结构参数从相关实验结果 [14,22] 提取. 可以看到, 当金属网格的开口率较低时, 由方格瑞利二阶近似得到的复合电极电导率与仿真结果基本吻合, 但当开口率 $p > 0.6$, 两者开始出现明显的偏离. 注意正如第 2 节中对 (12) 式的分析而得到的预判, 这一偏离并非来自瑞利模型的低阶近似, 它不能通过近似阶数的提高而改善. 图 4(a) 的插图给出了 $p = 0.6, 0.65, 0.7$ 时瑞利模型的结果随着截断阶数 N 的变化, 其中 $N = 4$ 对应 (12) 式中的 δ_p 二阶近似. 显然, 在 $N = 4$ 后已出现快速的收敛, 且收敛方向是电阻率略微增大, 令近似结果与仿真结果的偏差略有放大.

为进一步展示这种偏离产生的根本原因, 图 5 给出了开口率从 $p = 0.5$ 向 $p = 0.7$ 过渡过程中由有

限元计算得到的 xy 平面电势分布 (图 5(a)) 及相应的金属通道内电流分布 (图 5(b)) 的变化特征. 由于中心开孔区域的 TCO 电阻率远大于金属通

道电阻率, 金属线内电流呈现出明显的绕行趋势. 图 5(b) 中同时还提供了基于瑞利模型的圆孔方格构型进行的仿真计算结果. 可以明显看出, 当开口

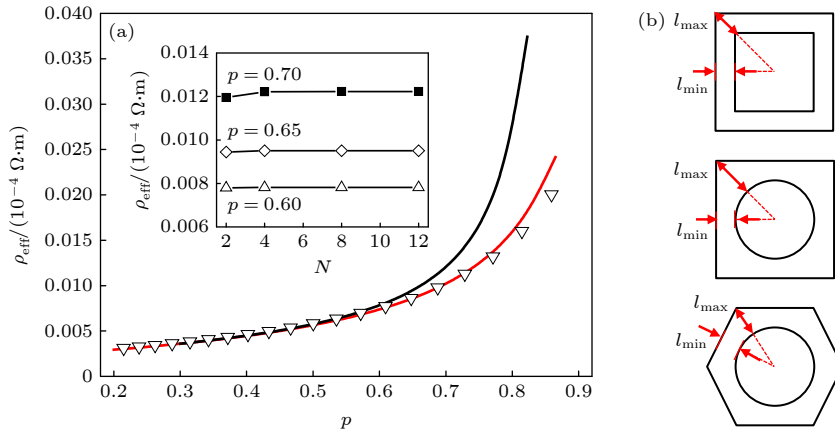


图 4 单层金属网格-TCO 复合电极的仿真结果与修正前后的瑞利近似结果对比 (a) 金属网格-TCO 单层复合电极的有效 ρ_{eff} 电阻率随开口率 p 的变化, 三角点为图 3 所示结构的仿真结果, 黑色曲线为方格瑞利模型的二阶近似, 红色曲线为六角格瑞利模型的二阶近似, 插图为方格瑞利模型的有效电阻率随截断阶数 N 的变化, 计算中采用的组分材料为 Ag 和 ITO, 其电阻率从文献 [22] 提取, $\rho_{\text{m}} = \rho_1 = 2 \times 10^{-7} \Omega \cdot \text{m}$, $\rho_{\text{TCO}} = \rho_2 = 8.0096 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$; (b) 3 种金属网格形态的对比, (由上至下) 仿真中采用的方格方孔、瑞利方格、瑞利六角格, l_{min} 为网格金属通道内最窄处, l_{max} 为网格金属通道内最宽处

Fig. 4. Comparison between simulation results and Rayleigh approximations before and after correction for the mesh-TCO layer resistivity: (a) Dependence of the effective resistivity ρ_{eff} vs. open ratio p , triangles is the simulation results for a layer of metal mesh embedded in TCO with the structure shown in Fig. 3, black line is the calculated results from a square-lattice Rayleigh model in the 2nd order, red line is the calculated results from a hexagonal-lattice Rayleigh model in the 2nd order, inset is the convergence of the effective resistivity of the square Rayleigh model with the truncation order N for different open-ratios, the components in the calculations are Ag and ITO with resistivity, $\rho_{\text{m}} = \rho_1 = 2 \times 10^{-7} \Omega \cdot \text{m}$, $\rho_{\text{TCO}} = \rho_2 = 8.0096 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$ [22]; (b) comparison of different mesh structure, downward is the square lattice with square hole as adopted in simulations, square lattice with circular hole as adopted in the square Rayleigh model, hexagonal lattice with circular hole as adopted in the hexagonal Rayleigh model, l_{min} is the minimum of the metallic channel width, l_{max} is the maximum of the metallic channel width.

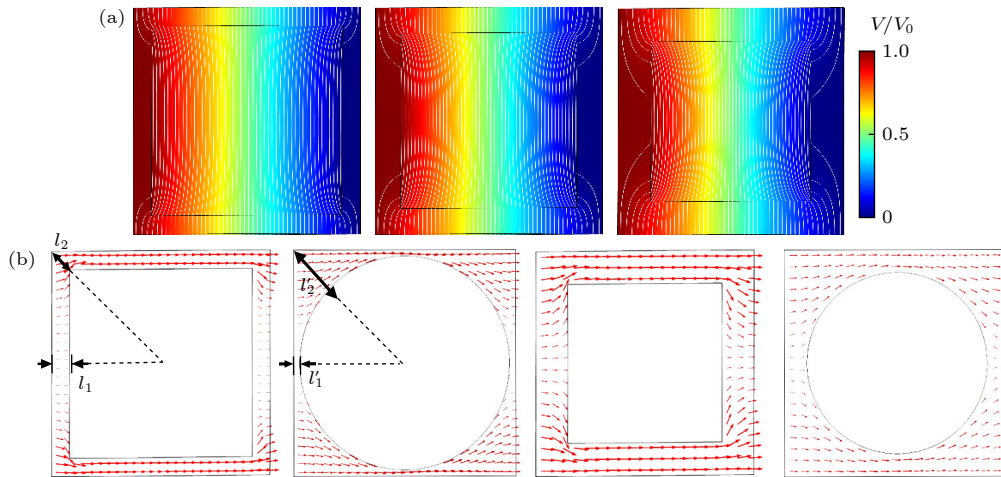


图 5 单层金属网格/TCO 复合电极仿真的电势分布与电流密度矢量分布 (a) 不同开口率下方孔方格的电势分布, 由左至右 $p = 0.7, 0.6, 0.5$; (b) 方格方孔型与方格圆孔型的金属通道电流密度分布仿真结果对比, 左二图开口率 $p = 0.7$, 右二图开口率 $p = 0.5$, l_1, l_1' 表示网格金属通道内最窄处, l_2, l_2' 表示网格金属通道内最宽处, 组分电阻率设置同图 4(a)

Fig. 5. Distributions of electric potential and current density vector from the simulations for a layer of metal mesh embedded in TCO: (a) The electric potential distribution for the mesh of a square array with square opens, from left to right $p = 0.7, 0.6, 0.5$; (b) the current distributions in the metallic region for different meshes, open ratio $p = 0.7$ in the second figure from the left, open ratio $p = 0.5$ in the second figure from the right, l_1, l_1' represents minimum of the metallic channel width, l_2, l_2' represents maximum of the metallic channel width.

率达到 0.7 时, 金属通道构型受到内部孔型的影响已变得十分显著. 如图标注, 相对于方孔体系, 圆孔体系中 l_1' 处形成的狭窄瓶颈预示着电阻率不可忽略的提升; 同时, 圆孔体系金属通道的最宽处与最窄处的尺度比值也随着开口率的增大而迅速上升. 与之对应的, 是金属通道内电流分布在高开口率时必然受到孔型变化的明显影响. 因此, 对比之前截断近似的微弱影响, 可以确认孔型近似才是瑞利模型在高开口率下电阻率明显偏大的根本原因.

上述孔型近似导致的结果偏差可通过瑞利模型的格型修正进行弥补. 如图 5(b) 所示, 对于具有方孔方格形态的复合电极, 瑞利模型的孔型近似所导致的最明显的结构偏差在于金属通道的宽窄比 l_2/l_1 被显著放大, 而这一结构偏差的根源在于格子原胞的内外边界对称性的失配: 对于复合电极的方孔方格, 其原胞的内外边界均为正方形的四重旋转对称性; 而对于瑞利方格模型, 原胞的外边界保持了正方对称性, 但内部边界则是具有任意旋转对称性的圆. 若要在保持圆孔近似的前提下尽可能地改善通道畸变过大的问题, 需要尽可能地提高原胞外边界的对称性, 也就是整个格子的点群对称性. 众所周知, 二维周期格子的最高点群对称性为六重旋转对称. 因此, 采用如图 4(b) 所示的六角格瑞利模型很有可能极大地改善其近似结果在开口率 $p > 0.6$ 后发生的偏离.

为了验证以上设想, 我们计算了六角格瑞利模型的有效电导率随开口率的变化. 六角格瑞利模型的电导表达式的推导过程与方格瑞利模型基本一致, 只需要调整格型对称性的变化对电势表达式的影响, 此处不再赘述. 在二阶近似下, 其有效电导率与开口率 p 及电阻率参数 $\nu' = (\sigma_m + \sigma_{\text{ITO}})/(\sigma_m - \sigma_{\text{ITO}})$ 的函数关系为^[24]

$$\sigma_{\text{eff}} = 1 - \frac{2p}{\nu' + p - \frac{0.075422}{\nu'} p^6 - \frac{0.000076}{\nu'} p^{12}}. \quad (14)$$

与 (13) 式相比, 分母中后两项 p 指数从 4 的倍数变为 6 的倍数, 对应的是格子从四重对称改变为六重对称.

图 4(a) 中给出了经过上述格型修正后瑞利模型计算得到的单层复合电极电阻率曲线 (红线) 与仿真结果 (三角点) 的对比. 可以看到修正后的近似结果确实的高开口率的范围内得到了极大改善, 在大约 $p < 0.8$ 的范围内都能与仿真结果较好地吻合. 当开口率接近 0.9 时, 偏差再次逐渐增大, 这是因为六角格瑞利模型中圆孔相互接触的极限开口

率即发生在 $p \approx 0.90$ 处, 故通道畸变在此处再次变得十分关键, 使得近似结果再次偏离.

这种通过格型修正实现的中高开口率效果改善在多层复合电极结构的计算结果中也能得到展现. 图 6 给出了一个典型的三明治结构下金属网格/TCO 复合电极的仿真结果与瑞利近似的比较. 该结构的主要特征参照了文献 [14] 中制备的相关材料: 在底层厚度 $d_{\text{bot}} = 47$ nm 的 ITO 薄层上生成不同厚度具有方孔方格型的金属 Ag 网格, 网格厚度在 10—40 nm 之间, 随后在其上覆盖相同厚度的 ITO 层, 制成具有三明治结构的复合电极 (图 6(a)). 将修正后的瑞利近似此结构以计算中间层的有效电阻率 ρ_{eff} , 代入多层薄膜电极的并联模型^[22], 即电极方阻为 $R_T = [h/\rho_{\text{eff}} + (d-h)/\rho_{\text{TCO}}]^{-1}$, 其中, d 是整个结构的总厚度, h 是中间层即金属网格厚度, ρ_{ITO} 是 TCO 层的电阻率, ρ_{eff} 是由 (14) 式计算得到的金属网格-TCO 复合单层有效电阻率.

我们同时针对此结构建立了有限元仿真模型并进行计算, 其仿真方法及参数设置与单层结构类似, 计算自由度在 8×10^4 — 100×10^4 之间. 图 6(b), (c) 中给出了不同的电导率组分比 $p = 0.4$ — 0.8 及不同的网格厚度 h 下仿真计算结果 (三角点) 与六角格瑞利模型近似结果 (实线) 在开口率 $p = 0.4$ — 0.8 范围内的对比. 可以看到, 在比较大的 α 和 h 参数变化范围内, 做了格型修正后的瑞利近似都可以较好地描述复合电极方阻随网格开口率变化的曲线特征. 这意味着研究者可以非常方便地利用此瑞利模型去初步预测金属网格-TCO 复合电极的输运特性如何受其各项材料参数与结构参数的影响.

4 讨 论

图 7 给出了用上述修正后的瑞利模型对文献 [14] 中实验测量得到的三明治复合电极方阻随金属网格开口率变化数据的拟合结果. 该结构中实验测得的结构参数为: 上下层 ITO 厚度 $d_{\text{bot}} = d_{\text{top}} = 47$ nm, 金属网格厚度 $h = 10$ nm. 拟合后得到的 Ag 和 ITO 的组分电阻率分别为: $\rho_{\text{Ag}} = 5.57 \times 10^{-8} \Omega \cdot \text{m}$, $\rho_{\text{ITO}} = 5.01 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$. 正如之前的分析, 拟合曲线的良好吻合范围可以延伸到中高开口率. 因此, 利用此修正后的瑞利模型可以帮助研究者从复合电极实验结果中提取出组分电阻率等与制备方式密切相关的重要信息.

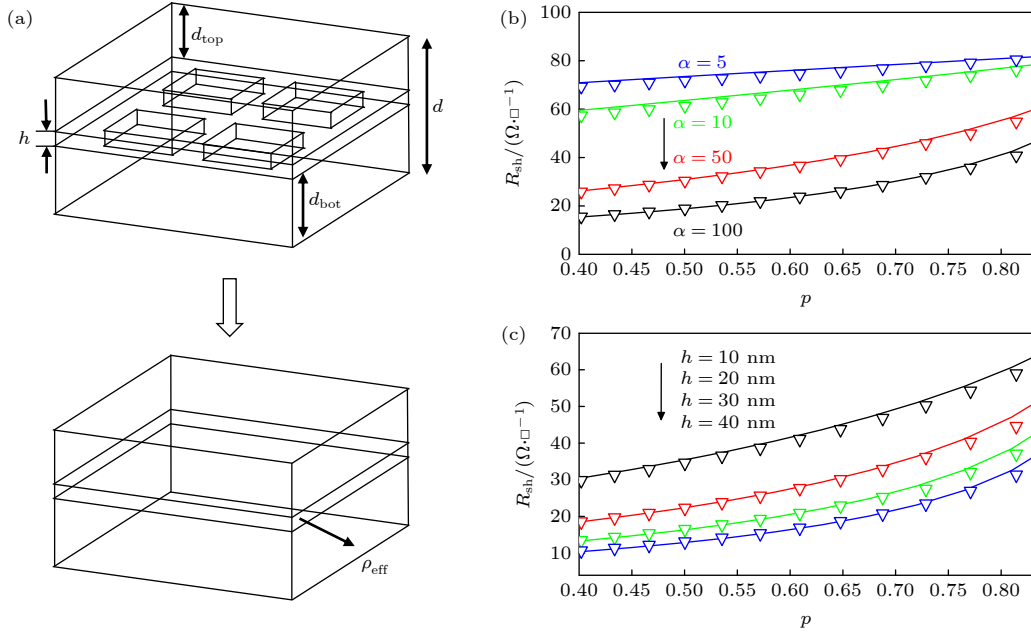


图 6 三明治结构复合电极方阻的仿真计算结果与修正后的瑞利近似结果的对比 (a) TCO/金属网格/TCO 三明治结构的有效介质近似示意图; (b) 不同组分电阻率比 α 下复合电极方阻 R_{sh} 随开口率 p 的变化曲线 ($h = 10 \text{ nm}$, $\rho_1 = 2 \times 10^{-7} \Omega \cdot \text{m}$, $\rho_2 = \alpha \rho_1$); (c) 不同网格层厚度 h 下复合电极方阻 R_{sh} 随开口率 p 的变化曲线 (组分电阻率比 $\alpha = 50$, $\rho_1 = 2 \times 10^{-7} \Omega \cdot \text{m}$, $\rho_2 = \alpha \rho_1$), 三角点为仿真结果, 实线为修正后的瑞利近似结果

Fig. 6. Comparison between the simulations results and the corrected Rayleigh approximation for the sheet resistance R_{sh} of the sandwich TCO/metal-mesh/TCO electrode: (a) Scheme of the effective medium approximation of the sandwich electrode; (b) R_{sh} vs. open-ratio p curves for different component resistivity ratio α ($h = 10 \text{ nm}$, $\rho_1 = 2 \times 10^{-7} \Omega \cdot \text{m}$, $\rho_2 = \alpha \rho_1$); (c) R_{sh} vs. open-ratio p curves for different mesh thickness h ($\alpha = 50$, $\rho_1 = 2 \times 10^{-7} \Omega \cdot \text{m}$, $\rho_2 = \alpha \rho_1$). Triangles represent simulation results, solid lines represent results from the corrected Rayleigh approximation.

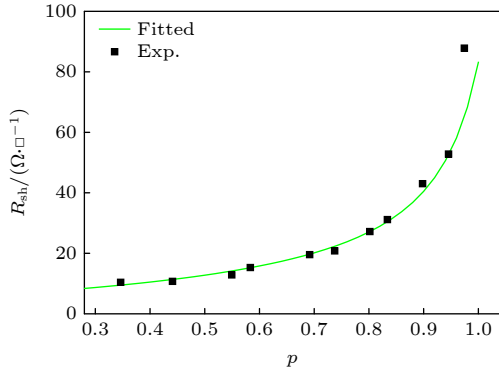


图 7 ITO/Ag 网格/ITO 三明治复合电极方阻 R_{sh} 随 Ag 网格开口率 p 的变化, 方点取自文献 [14] 的实验结果, 实线采用格型修正后的瑞利模型拟合得到的曲线, 相关结构参数与材料参数如正文所述

Fig. 7. The variance of the sheet resistance R_{sh} with mesh open-ratio p for an ITO/Ag-mesh/ITO composite sandwich electrode. Square represents experimental results for the experiments in Ref.[14], solid line represents the fitted result with the lattice-modified Rayleigh model, the relevant structure and material parameters are as described in the main text.

纳米尺度下金属薄膜的电阻率随膜厚有明显的变化, 在金属网格电极的设计中需要充分考虑此

特性, 并可利用其补偿金属网格开口导致的电极方阻下降. 表 1 给出提取自文献 [22] 的实验结果, 显示了嵌入 TCO 电极的银纳米层在层厚 $h = 8 - 20 \text{ nm}$ 范围内银电阻率 ρ_{Ag} 的变化情况. 相似的变化在其他实验中也经常被观察到 [31,32]. 若在金属网格/TCO 复合电极的瑞利模型中计入金属电阻随其层厚的变化 $\rho_m(h)$, 则基于 (14) 式的电极总方阻随金属网格厚度 h 与网格开口率 p 变化的表达式为

$$R_{sh}(p, h) = \left[\frac{d-h}{\rho_{\text{TCO}}} + \frac{h}{\rho_m(h)} \right] \times \left(1 - \frac{2p}{\nu' + p - a_1 p^6 / \nu' - a_2 p^{12} / \nu} \right)^{-1}, \quad (15)$$

其中, ρ_{TCO} 为所嵌入的 TCO 材料电阻率, $a_1 = 0.075422$, $a_2 = 0.00076$, $\nu' = \frac{1 + \rho_m(h) / \rho_{\text{TCO}}}{1 - \rho_m(h) / \rho_{\text{TCO}}}$, d 为复合电极的总厚度. 图 8 给出了将表 1 中列出的实验所得不同层厚下 Ag 电阻率数据代入 (15) 式计算得到的 ITO/Ag 网格/ITO 复合电极方阻, 其中 ITO 的电阻率从同一实验提取, Ag 网格嵌入于

表 1 金属网格厚度对三明治结构复合电极的影响
 Table 1. Effects of the metal mesh thickness on the sandwich-structured composite electrodes.

h/nm	8	10	12	14	16	18	20
$\rho_{\text{Ag}}/(\mu\Omega\cdot\text{cm})$	37.8	18.6	7.94	7.10	6.51	4.91	4.64
p_c	—	0	0.4675	0.5525	0.6375	0.7225	0.7650

电极中间位置, 网格厚度从 $h = 8\text{--}20\text{ nm}$, 上下 ITO 层的厚度为 35 nm , 复合电极总厚度 $d = h + 70\text{ nm}$ 与常用的 ITO 薄膜电极厚度大致相当. 图中从左到右给出了 $h = 8, 10, 12, 14, 16, 18, 20\text{ nm}$ 下共 6 组复合电极方阻随开口率的变化, 每组曲线的开口率 p 的变化范围均为 $0\text{--}0.85$. 每组曲线的最下端即在 ITO 电极中嵌入该厚度的 Ag 薄膜所得到的复合电极方阻, 可以观察到随着 Ag 层膜厚的增大导致的电极方阻下降. 随着 Ag 膜开口率的增大, 复合电极的方阻均呈现上升趋势. 图中的水平虚线给出 $h = 10\text{ nm}$ 厚的 Ag 膜嵌入 ITO 后的电极方阻 $R_{\text{sh},0} = 15.6\ \Omega/\square$ 的位置, 这一数值与文献 [22] 实验结果相吻合. 该虚线与各组曲线的交点对应的开口率 p_c , 意味着达到此开口率时, 通过膜厚增加带来的方阻下降仍足以补偿因为金属膜开口而导致的方阻上升. 表 1 中的第 3 行给出了 p_c 的具体数值. 可以看出, 对于厚度在 $12\text{--}20\text{ nm}$ 范围内 Ag 网格, 满足此条件的开口率范围在 $0.45\text{--}0.75$ 的中高范围内, 这与格型修正后的瑞利近似的适用范围可以很好地匹配.

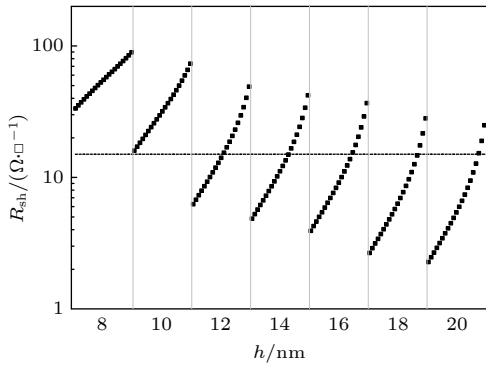


图 8 金属网格厚度 h 与开口率 p 对 ITO/Ag 网格/ITO 复合电极方阻 R_{sh} 的影响, 从左到右 6 组数据点分别对应 $h = 8, 10, 12, 14, 16, 18, 20\text{ nm}$, 每组数据点对应开口率从 $p = 0$ 到 $p = 0.85$, 步长均匀, 计算结果采用修正后的瑞利模型得到, 相关参数设置如正文所述

Fig. 8. The dependence of the ITO/Ag-mesh/ITO composite electrode on the mesh thickness h and open-ratio p , rightward corresponding $h = 8, 10, 12, 14, 16, 18, 20\text{ nm}$, each dataset corresponding $p = 0$ to $p = 0.85$, with uniform step, other parameters are set up as described in the main text.

瑞利近似的格型修正本质上是对孔型近似导致的通道畸变的修正. 为了进一步理解这一点, 我们计算了 3 种不同的格型孔型下金属通道的形状因子随开口率的变化 (图 9(a)), 其中形状因子 γ 定义为金属通道的最大宽度 l_{max} 与最小宽度 l_{min} (图 4(b)). 不同格型孔型的形状因子反映了相应结构中金属通道的畸变程度. 对于具有方孔方格形态的金属网格, 其形状因子始终保持稳定值 $\gamma = \sqrt{2}$ (灰色虚线); 而方格瑞利近似下, 由于孔型的差异导致形状因子随着开口率的增大而上升 (黑色实线), 尤其在 $p > 0.6$ 后, 其上升速度明显增大, 并于 $p \approx 0.78$ 处趋于发散. 参照图 4(a) 中瑞利近似结果与仿真结果的对比, 这正是该近似下有效电阻率开始发生明显偏离的区域. 而在针对通道畸变做出格型修正后, 所得到的六角格瑞利近似形状因子随开口率的迅速上升区被明显右移和压缩 (红色实线), 与图 4(a) 修正后呈现的瑞利近似应用范围扩张形成呼应.

图 9(b) 给出了修正前后瑞利近似结果与仿真结果之间的相对误差随开口率的变化曲线. 图中的水平虚线给出的是相对误差 5% 的位置, 高于此位置的曲线范围可视为近似模型失效区, 以图中的垂直虚线标注. 图 9(a) 中标注出了同样位置的垂直虚线, 更加明确地展示了瑞利近似的失效与形状因子快速上升区间之间的对应关系. 这一对应关系展示了本文方法的适用范围与金属通道畸变程度密切相关, 因此其对金属通道形态稳定的方孔方格型网格尤其适用. 对于其他类型的网格结构, 可以预期在形状因子随开口率具有稳定性的前提下该方法也至少具有一定的参考意义. 如文献 [32] 中讨论的基于裂纹网络的透明电极, 其网格尺寸与形状都具有明显随机性, 但以形状因子描述的金属通道形态稳定, 其仿真结果表明本文中采用的六角格瑞利近似方法在中高开口率下也能较好地描述此类网格的有效电阻率.

作为对比, 我们在图 9(b) 中提供了另外两种近似下得到的有效电阻率的相对误差. 一种是保持方格格型、但截断阶数提升到 $N = 42$ 后的瑞利模

型结果 (图 9(b), 方块). 根据文献 [24], 在此截断阶数下, $p \leq 0.78$ 时的有效电导率可精确至 5 位有效数字. 但正如前文分析, 截断阶数的提高并不能改善通道畸变带来的误差; 相反, 由于提升了截断近似, 使得圆孔导致的通道畸变影响得到了更准确的计算, 在失效区的误差不降反增. 另一种近似方法的结果 (图 9(b) 浅灰色实线) 来自于文献 [30], 其中研究者针对方孔方格型二元复合介质有效电阻率问题提出了一个基于电阻网络理论的唯一模型. 该模型依据方孔方格下的电势与电流分布的部分几何特征构建了两种等效电路, 并以统计等价性对两种电路混合平均后得到整个复合体系的有效

电阻率. 作为唯象模型, 这种混合型电阻网络在构建时有两个基本的参照点: 一是当 $p \rightarrow 1$ 且 $\nu \rightarrow 0$ 时, 整个复合介质应当趋于一个 $N \times N$ 方格电阻网络模型, 按照基尔霍夫定律求解得到 $N \rightarrow \infty$ 时其有效电阻率为 $\rho \approx \rho_m l/w$, 其中 ρ_m 为金属线电阻率, w 为金属线宽, l 为网格周期; 二是在文献 [24] 中由解析证明得到的 $p = 1/4$ (即 $w = l/2$) 时方格方孔二元复合介质有效电阻率的严格解 $\rho = \sqrt{(2 - \nu'^{-1})/(2 + \nu'^{-1})}$. 反映在图 9(b) 的误差曲线中, 可以看到该模型近似的优势区 ($\delta < 0.01$) 发生在 $p = 0.25$ 附近和 $p = 0.8$ 之后. 通过上述不同修正方法之间的比较, 可以看到不同修正方案主要在不同的开口率范围内具有优势, 而我们提出的瑞利近似格型修正方法的优势区在 $p = 0.6-0.8$ 之间的中高开口率范围内, 正是金属网格-TCO 复合电极研究中非常重要的开口率范围. 实际应用中, 还可通过选择是否进行格型修正方便地在中区和高区之间进行切换, 以进一步提高瑞利近似的计算精度.

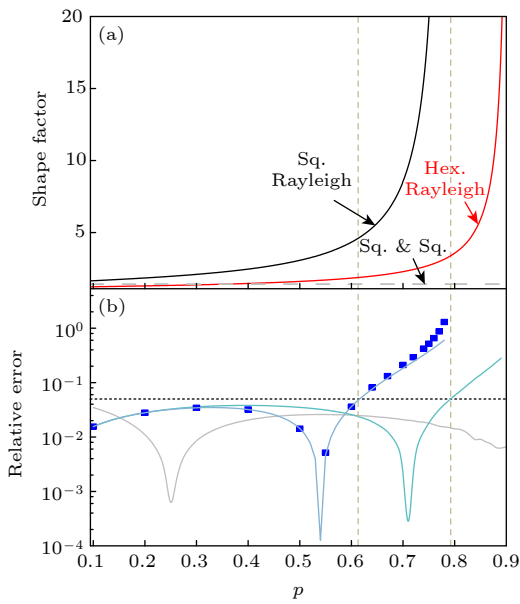


图 9 (a) 3 种不同的格型孔型下金属通道的形状因子随开口率的变化, 灰色虚线标注为 Sq.&Sq., 代表具有方格方孔形态的金属网格; 黑色实线标注为 Sq. Rayleigh, 代表瑞利方格; 红色实线, 标注为 Hex. Rayleigh, 代表瑞利六角格; (b) 不同近似结果与仿真结果的相对误差随开口率的变化, 浅灰色实线为等效电路近似, 蓝灰色实线为二阶瑞利方格近似, 蓝绿色实线为二阶瑞利六角格近似, 蓝色方块为瑞利方格高阶截断近似

Fig. 9. (a) The variance of the shape factor of metal channels with open ratio for different mesh type, gray dash line labeled Sq.&Sq., mesh of a bi-periodic square lattice, black solid line labeled Sq. Rayleigh, Rayleigh model of a square lattice, red solid line labeled Hex. Rayleigh represents Rayleigh model of a hexagonal lattice; (b) the variance of the relative error of different approximations with respect to the simulation results, light-gray solid represents equivalent circuit approximation; blue-gray solid represents square Rayleigh approximation in the 2nd order; blue-green solid represents hexagonal Rayleigh approximation in the 2nd order; blue squares represents high-order square Rayleigh approximation.

5 总结

综上所述, 通过对金属网格-TCO 复合电极的瑞利模型加以格型修正, 改善由于孔型近似导致的通道畸变问题, 可以将瑞利近似下的有效电导表达式应用于单层或多层复合电极的大部分开口率范围, 为此类复合电极的性能分析和结构设计提供了简便有效的计算工具.

最后, 我们要指出瑞利模型本身所具有的良好拓展性. 如前文所述, 瑞利模型是在充分考虑边界条件对称性的前提下求解电势方程而得到的近似结果, 因此相对于其他唯象模型, 它不仅更能反映出决定复合电极性能的关键物理机制 (如在本文中展现的通道形状因子在中高开口率范围内的重要性), 而且至少在以下 3 个方面具有更好的拓展性. 1) 适用范围的拓展. 本文通过格型修正将方格方孔瑞利近似的适用范围拓宽到 $p = 0.8$ 附近. 对于更高的开口率范围, 圆孔近似导致的明显偏差已不可避免, 但是仍然可能通过在瑞利模型中采用方孔边界的高开口率极限近似, 为此极高开口率范围内的复合电极建立良好的近似模型. 类似的工作已在文献 [27] 中有初步的开展. 2) 网络结构的拓展. 由于瑞利模型主要以结构对称性为出发点建立数学

分析, 所以此类分析方式并不局限于二维平面上的简单规则格子, 而是可以推广至三维结构、无规结构等更复杂的复合体系^[26,32], 为金属网格-TCO 复合电极的结构设计提供更多的理论参考. 3) 性能研究的拓展. 金属网格-TCO 复合电极是一种具有多功能的结构, 需要同时考虑电学、光学、力学等多种性能之间的关系与平衡. 在常见的仿真计算中, 需要对同一结构的不同性能分别建立第一性原理方程计算, 使得计算的工作量巨大. 而瑞利模型的一大特点是, 其分析方式不仅可适用于电阻性质的计算, 也可应用于光学性质、力学性质、热学性质等多种物理问题. 这使得我们有可能在同一个模型的框架中实现多种性能分析, 为寻找复合电极的结构优化方案提供更高效便捷的途径.

参考文献

- [1] Gao J W, Kempa K, Giersig M, Akinoglu E M, Han B, Li R P 2016 *Adv. Phys.* **65** 553
- [2] Shen J J 2021 *Synth. Met.* **271** 116582
- [3] Lu X, Zhang Y K, Zheng Z J 2021 *Adv. Electron. Mater.* **7** 2001121
- [4] Wang L, Zhang X D, Yang X, Wei C C, Zhang D K, Wang G C, Sun J, Zhao Y 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 028801 (in Chinese) [王利, 张晓丹, 杨旭, 魏长春, 张德坤, 王广才, 孙建, 赵颖 2014 物理学报 **63** 028801]
- [5] Spencer J A, Mock A L, Jacobs A G, Schubert M, Zhang Y H, Tadjer M J 2022 *Appl. Phys. Rev.* **9** 011315
- [6] Fortunato E, Ginley D, Hosono H, Paine D C 2007 *MRS Bull.* **32** 242
- [7] Peng W, Li L X, Yu S H, Yang P, Xu K L 2022 *Ceram. Int.* **48** 381
- [8] Wei W Z, Hong R J, Wang J X, Tao C X, Zhang D W 2017 *J. Mater. Sci. Technol.* **33** 1107
- [9] Guillen C, Herrero J 2008 *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **92** 938
- [10] Sivaramakrishnan K, Alford T L 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 052104
- [11] Jeong J A, Park Y S, Kim H K 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 023111
- [12] Mohamedi M, Challali F, Touam T, Konstantakopoulou M, Bockelee V, Mendil D, Ouhenia S, Djouadi D, Chelouche A 2023 *Appl. Phys. A* **129** 545
- [13] Kim S, Montero J, Yoon J, Choi Y, Park S, Song P, Österlund L 2022 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **14** 15756
- [14] Lee S Y, Cho E S, Kwon S J 2019 *Appl. Surf. Sci.* **487** 990
- [15] Cho E S, Kwon S J 2021 *J. Semicond. Technol. Sci.* **21** 348
- [16] Khan A, Lee S, Jang T, Xiong Z, Zhang C P, Tang J Y, Guo L J, Li W D 2016 *Small* **12** 3021
- [17] Jiang Z, Fukuda K, Xu X M, Park S, Inoue D, Jin H, Saito M, Osaka I, Takimiya K, Someya T 2018 *Adv. Mater.* **30** 1707526
- [18] Yuan S Q, Fan Z B, Wang G J, Chai Z M, Wang T Q, Zhao D W, Busnaina A A, Lu X C 2023 *Adv. Sci.* **10** 2304990
- [19] Yu J S, Jung G H, Jo J, Kim J S, Kim J W, Kwak S W, Lee J L, Kim I, Kim D 2013 *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **109** 142
- [20] Sun M D, Kik P G 2020 *Opt. Express* **28** 18112
- [21] Lee H B, Jin W Y, Ovhal M M, Kumar N, Kang J W 2019 *J. Mater. Chem. C* **7** 1087
- [22] Jeong J A, Kim H K 2009 *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **93** 1801
- [23] Strutt J W 1892 *Philos. Mag.* **34** 481
- [24] Perrins W T, McKenzie D R, McPhedran R C 1979 *P. Roy. Soc. A-Math. Phys.* **369** 207
- [25] Keller J B 1963 *J. Appl. Phys.* **34** 991
- [26] McKenzie D R, McPhedran R C 1977 *Nature* **265** 128
- [27] Lu S Y 1995 *J. Compos. Mater.* **29** 483
- [28] Zen N, Puurtinen T A, Isotalo T J, Chaudhuri S, Maasilta I J 2014 *Nat. Commun.* **5** 3435
- [29] Obnosov Y V 1999 *SIAM J. Appl. Math.* **59** 1267
- [30] Guralnik B, Hansen O, Henrichsen H H, Caridad J M, Wei W, Hansen M F, Nielsen P F, Petersen D H 2021 *Nanotechnology* **32** 185706
- [31] Ding G W, Clavero C, Schweigert D, Le M 2015 *AIP Adv.* **5** 117234
- [32] Kim J, Truskett T M 2022 *Appl. Phys. Lett.* **120** 211108

Rayleigh analysis and numerical simulations of metal-mesh/ transparent conducting oxide composite transparent electrode*

Ding Yi-Yang¹⁾ Zou Shuai¹⁾²⁾ Sun Hua^{1)†} Su Xiao-Dong^{1)‡}

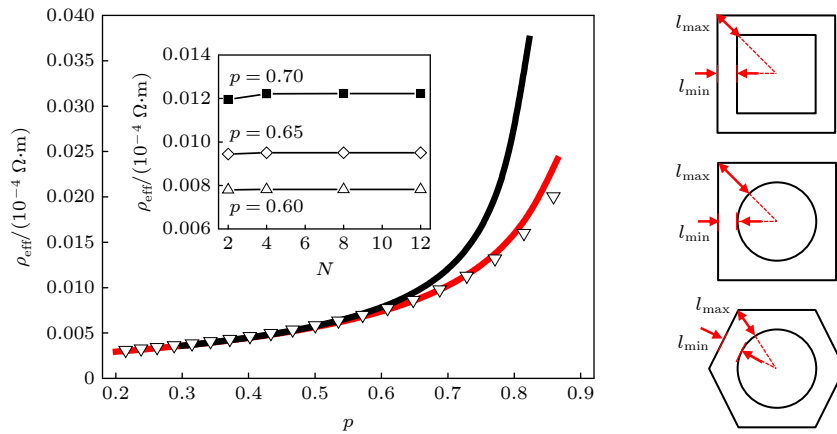
1) (*Jiangsu Key Laboratory of Thin Films, School of Physical Science and Technology, Soochow University, Suzhou 215006, China*)

2) (*Jiangsu Key Laboratory of Advanced Negative Carbon Technologies, Suzhou 215123, China*)

(Received 2 February 2024; revised manuscript received 11 May 2024)

Abstract

Transparent conducting oxides (TCOs), especially indium tin oxides (ITOs), have played an important role in realizing optoelectronics devices. Composite electrodes fabricated by introducing different types of metal-meshes into TCO have exhibited improved electric properties as well as good transparency. This technology can also reduce the demand for ITO and provide the candidates of flexible electrodes for wearable devices. Analysis of the electric properties of this type of electrode, such as the variance of the sheet resistance of the composite electrodes with the embedded mesh structure parameters, can provide a theoretical basis for designing and fabricating this electrode. But detailed studies are still lacking. This work focuses on the electrical property analysis of the typical square hole and grid shaped metal mesh-TCO composite electrodes based on Rayleigh model and finite-element simulation, respectively. The electric potential distribution and current density distribution are obtained from the finite element calculations, revealing that the dramatic deformation of the metallic channels in the composite results in the failure of a conventional Rayleigh model for the moderate and high opening rates. Accordingly, we adopt a lattice correction to the Rayleigh model to reduce the channel deformation by increasing the symmetry of the exterior boundary of the lattice cell. A comparison of the results from the simulations with those from the second-order approximation of the lattice-adapted Rayleigh model shows that the new analytic form of the effective conductivity is applicable to a much larger opening-rate range for both the monolayer and the sandwich structures of metal-mesh TCO composite electrodes. The variances of



* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 52202276), the Natural Science Foundation of the Jiangsu Higher Education Institutions of China (Grant No. 22KJB480010), the Priority Academic Program Development of Jiangsu Higher Education Institutions, China (PAPD), and the Suzhou Science and Technology Plan Project, China (Grant No. SYC2022041).

† Corresponding author. E-mail: hsun@suda.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: xdsu@suda.edu.cn

the sheet resistance and the effective conductivity with different material and structure parameters of the composite electrodes are calculated and discussed based on the lattice-adapted Rayleigh approximation. The results are well consistent with experimental results. A comparison of our model with other theoretical models is also made, showing that this lattice-adapted Rayleigh approximation can be used as a simple and efficient theoretical tool to analyze and design the concerned transparent composite electrodes.

Keywords: transparent conductors, metal mesh electrodes, composites medium, finite element simulation

PACS: 68.65.-k, 73.40.Vz, 88.40.fc

DOI: [10.7498/aps.73.20240230](https://doi.org/10.7498/aps.73.20240230)

金属网格-透明导电氧化物复合型透明电极的瑞利分析和仿真

丁怡洋 邹帅 孙华 苏晓东

Rayleigh analysis and numerical simulations of metal-mesh/ transparent conducting oxide composite transparent electrode

Ding Yi-Yang Zou Shuai Sun Hua Su Xiao-Dong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 146801 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240230

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240230>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于裂纹模板法的金属网格透明导电薄膜制备及性能改进

Preparation and performance improvement of metal grid transparent conductive film based on crack template method

物理学报. 2022, 71(15): 154201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220101>

双泡耦合声空化动力学过程模拟

Simulation of dynamic process of double bubble coupled acoustic cavitation

物理学报. 2023, 72(2): 024303 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221571>

透明导电ZnO:Al/Cu网格复合膜及其电加热性能

Transparent conductive ZnO:Al/Cu mesh composite film and its electric heating performance

物理学报. 2022, 71(18): 187304 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220529>

SrSnO₃作为透明导电氧化物的第一性原理研究

First-principles study of SrSnO₃ as transparent conductive oxide

物理学报. 2023, 72(1): 013101 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221544>

非规则形状介质内辐射-导热耦合传热的间断有限元求解

Discontinuous finite element solutions for coupled radiation-conduction heat transfer in irregular media

物理学报. 2020, 69(3): 034401 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191185>

低光学衍射随机六元环金属网络导电膜

Low optical diffraction random hexagonal structure metallic network conductive films

物理学报. 2022, 71(13): 134202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212010>