

Одеський національний університет імені І. І. Мечникова

(повне найменування вищого навчального закладу)

Фізичний факультет

(повне найменування інституту/факультету)

Кафедра теоретичної фізики та астрономії

(повна назва кафедри)

Дипломна робота

магістра

(освітньо-кваліфікаційний рівень)

на тему: «Діелектричний відгук
дисперсій м'яких неоднорідних частинок»

«Dielectric response of dispersions of soft inhomogeneous particles»

Виконав: студент денної форми навчання

спеціальність 8.04020301 - фізика

Дорош Андрій Валерійович

Керівник к.ф.-м.н., доц. Сушко М.Я.

Рецензент д.т.н., проф. Герєга О.М. (ОНАХТ)

Рекомендовано до захисту:

Протокол засідання кафедри

№ 13 від 05. 6.2017 р.

Захищено на засіданні ЕК № 1

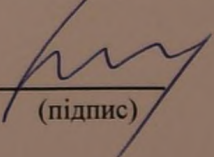
протокол № 1 від 19. 06.2017 р.

Оцінка відмінно / A / 96

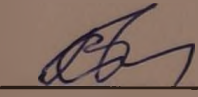
(за національною шкалою, шкалою ECTS, бали)

Завідувач кафедри

Голова ЕК


(підпис)

Адамян В.М.


(підпис)

Калінчак В.В.

ЗМІСТ

Вступ.....	3
1. Модель гомогенізації.....	7
1.1. Метод компактних груп неоднорідностей.....	7
1.2. Типи електродинамічної гомогенізації.....	8
1.3. Варіаційний принцип Хашина-Штрікмана.....	9
1.4. Вибір матриці для задачі гомогенізації.....	12
2. Діелектричний відгук систем однорідних кульок.....	14
2.1. Загальний формалізм.....	14
2.2. Граничний випадок малоконцентрованих систем.....	15
2.3. Випадок абсолютно м'яких кульок. Порівняння результатів з числовим експериментом.....	16
2.4. Системи кульок із заданим ступенем твердості.....	22
2.5. Порівняння з результатами інтегрального методу.....	23
3. Діелектричний відгук систем неоднорідних кульок.....	24
3.1. Рівняння для ефективної проникності. Порівняння результатів з числовим експериментом.....	24
3.2. Проникність дисперсій неоднорідних кульок з неперервним профілем проникності.....	31
Висновки.....	35
Література.....	37

ВСТУП

Питання про вплив статистичної мікроструктури на фізичні властивості речовин, поширених у природі або штучно синтезованих, має фундаментальне та технологічне значення для широкого кола фізичних, хімічних, біологічних та міжгалузевих дисциплін [1, 2]. Зокрема, воно лежить в основі матеріалознавства, до основних завдань якого можна віднести конструювання композитних матеріалів із бажаними механічними та електричними властивостями. Важлива обернена задача полягає у встановленні мікроструктури речовини через відомий її відгук на прикладені поля різної фізичної природи.

У запропонованій роботі представлено результати дослідження ефективного діелектричного відгуку гетерогенних систем, утворених диспергуванням діелектричних частинок в однорідну діелектричну матрицю. Отримані результати можуть стати у нагоді при конструюванні із заданих чистих речовин виробів із прогнозованими електричними характеристиками [3], наприклад, конденсаторів зі значною ємністю при мінімальних розмірах та максимальній пробивній напрузі [4], аналізі діелектричних властивостей твердих композитних електролітів і полімерних композитів [5, 6], колоїдів і нанорідин [7, 8] тощо.

Найбільш просунутися при розв'язанні задачі гомогенізації, тобто відшуканні ефективних електрофізичних параметрів гетерогенної системи, вдається у випадку довгохвильових полів. Та навіть у цьому випадку класичні підходи Максвелла-Гарнетта [9] та Бруггемана [10], а також чисельні їх модифікації [1, 11] базуються, в основному, на одночастинкових наближеннях та враховують лише дипольні ефекти. Частинки зазвичай вважаються однорідними, а випадок неоднорідних частинок залишається слабо дослідженим [12], хоча з практичної точки є надзвичайно важливим. Вибір матриці, від якої треба відштовхуватися при гомогенізації системи, тобто середовища, можливо й уявного, у якому знаходяться компоненти реальної системи, строго не обґрунтовується.

У запропонованій роботі розглядаються такі задачі: 1) обґрунтування вибору матриці для електродинамічної гомогенізації гетерогенних діелектричних систем; 2) побудова загального формалізму для визначення ефективного діелектричного відгуку систем сферичних частинок з різним ступенем твердості; 3) обчислення ефективної діелектричної проникності гетерогенних систем, які можуть розглядатися як дисперсії твердих або взаємнопроникних частинок (взагалі кажучи, неоднорідних) та їх кластерів в однорідній ізотропній матриці; 4) тестування теорії шляхом порівняння її з аналітичними результатами для систем твердих неоднорідних частинок з малою діелектричною контрастністю та з результатами комп'ютерного моделювання для систем взаємнопроникних частинок.

Аналіз здійснюється в рамках методу компактних груп неоднорідностей [13–15]. Термін «компактна група» означає будь-яку макроскопічну область, усередині якої всі відстані між неоднорідностями набагато менші від довжини хвилі прикладеного поля у зразку. Метод дозволяє ефективно усереднювати і підсумовувати ітераційні ряди для векторів напруженості та індукції електричного поля в дрібнодисперсних системах зі складною мікроструктурою. Для розв'язання питання про вибір матриці для діелектричної гомогенізації використовується ідея [16] застосувати варіаційний принцип Хашина-Штрікмана [17], сформульований для певного функціонала, побудованого з напруженостей полів та локальних відхилень діелектричної проникності від деякого сталого значення. Тоді в якості матриці для гомогенізації в рамках методу компактних груп неоднорідностей треба брати уявну матрицю з проникністю, що дорівнює шуканій ефективній проникності, тобто користуватися гомогенізацією типу Бруггемана. Цей результат не спирається на жодні додаткові модельні уявлення про структуру та характер взаємного впливу неоднорідностей у системі, крім уже зазначених. В принципі, існує ще один спосіб вибору матриці, але він може мати відношення до метаматеріалів [18, 19], які в цій роботі не розглядаються.

Після вибору матриці для гомогенізації задача про знаходження ефективної проникності зводиться до обчислення моментів від функції, що описує локальні відхилення діелектричної проникності в системі від шуканої ефективної проникності, подальшого підсумовування цих моментів та визначення об'ємної концентрації компонентів системи через статистичні середні від різних комбінацій характеристичних функцій компонентів. Для однорідних куль в результаті отримуємо рівняння типу Бруггемана як функцію проникностей та об'ємних концентрацій компонентів суміші.

Для ілюстрації загального формалізму розглянуто випадок, коли дисперговані частинки є однорідними кульками з різним ступенем твердості (м'якості); граничними випадками є тверді (взаємонепроникні) та абсолютно м'які (вільно проникні одна в одну) кульки. Отримані результати добре узгоджуються з відомими аналітичними результатами [20–22] для малоконцентрованих систем, коли ідея компактних груп може бути під питанням та диференціальним рівнянням [23] для всього інтервалу концентрацій та результатами обчислювального експерименту [24].

Однак кількісні розбіжності нашої теорії з результатами числового експерименту [24] є значними і видаються неприйнятними. Щоб пояснити цей факт, нами було звернено увагу на наявність в комп'ютерних експериментах систематичних похибок, пов'язаних з використанням методу скінченних різниць та, як результат, невизначенністю значення діелектричної проникності між двома вузлами, що лежать по різні боки міжфазної границі. Ця невизначеність еквівалентна введенню в розгляд третьої фази з неконтрольованими геометричними і діелектричними параметрами.

Для кількісного аналізу вказаних похибок, а також подальшого поглиблення теорії, запропонована модель була узагальнена на випадок систем сферичних частинок з кусково-неперервним профілем діелектричної проникності. Отримані результати дуже добре узгоджуються з аналітичними обчисленнями [12, 25] для

малоконтрастних систем неоднорідних твердих кульок та дозволяють, за умови введення тонкого міжфазного шару, повністю відтворити результати числових обчислень [24]. Розбіжності з даними числових моделювань [26] при великих контрастах, швидше всього, зумовлені самою постановкою експерименту, умови якого відповідають гомогенізації типу Максвелла-Гарнетта. При формальній реалізації такого підходу в рамках нашої теорії [13, 14] та введенні тонкого приповерхневого шару результати обчислень [26] також можна відновити.

Розглянуті задачі представляють самостійний інтерес при розгляді питань про роль форми частинок, характер їх неоднорідності у формування ефективної проникності, кластеризацію частинок тощо. Отримані в роботі результати дозволяють зробити висновок про достатню ефективність та надійність запропонованої схеми гомогенізації дисперсних діелектричних систем. Він представляє інтерес і може бути використаний для аналізу діелектричних систем із складною мікроструктурою, вивчення ролі процесів кластеризації частинок на ефективний відгук системи, створення градієнтних композитних матеріалів із заданими діелектричними характеристиками. Такі задачі стали справді актуальними внаслідок значного технологічного прогресу та розвитку нових технологій, включаючи методи термічного напилення, осадження з газової фази, порошкової металургії [27], високотемпературний синтез, ущільнення з допомогою великих струмів та тисків, спікання в плазмі [28]. Такі матеріали мають перспективні застосування: для подовження терміну роботи двигунів, в космічній галузі, в медицині [28], в приладах для перетворення енергії та в екологічних цілях [27]. Протягом останніх десятиліть активізувалися дослідження в цій області, зокрема, деякі приклади: вплив на значення порогу перколяції [27], створення більш надійних п'єзoeлектричних приладів [29], модуляція діелектричних характеристик композитів регулюванням мікроструктури [30].

ВИСНОВКИ

У рамках методу компактних груп неоднорідностей [13–16] запропоновано загальний підхід до задачі про знаходження ефективної діелектричної проникності системи діелектричних частинок різного ступеня твердості, диспергованих в однорідну ізотропну матрицю. Для цього припускається, що діелектричний відгук заданої системи еквівалентний відгуку модельної системи, утвореної диспергуванням реальної матриці і частинок у деяке уявне середовище. Із залученням варіаційного принципу Хашина-Штрікмана [17] показується, що вимога незалежності результату від способу гомогенізації (через лінійне співвідношення між індукцією та полем чи через рівність енергій гетерогенної та гомогенізованої систем) виконується лише за умови, що проникність уявного середовища збігається з шуканою ефективною проникністю (гомогенізація типу Бруггемана).

Обчислення ефективної проникності модельної системи виконується за загальними формулами методу [13–16]. Воно зводиться до моделювання розподілу локальної діелектричної проникності в системі, обчислення статистичних моментів відхилення цього розподілу від шуканої ефективної проникності та їх підсумовування.

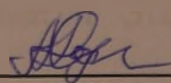
Запропонований формалізм застосовано до системи однорідних кульок різного ступеня твердості. Необхідні обчислення повністю реалізовано для систем твердих і статистично незалежних (взаємопроникних) частинок. Отримані результати узагальнено на випадок системи неоднорідних взаємопроникних кульок з кусково-неперервним розподілом проникності. Як і для твердих неоднорідних кульок [13, 15], ефективна проникність системи знаходиться з певного інтегрального співвідношення.

У граничному випадку низьких концентрацій отримані результати узгоджуються з відомими аналітичними результатами [20–22] для малоконцентрованих дисперсій твердих однорідних кульок. Поява

розбіжностей при зростанні об'ємної концентрації пов'язана з внесками багаточастинкових кореляційних та поляризаційних ефектів, які ефективно враховуються нашою теорією.

Виконано порівняння отриманих результатів з результатами комп'ютерних моделювань [24] для системи однорідних кульок, що можуть вільно перекриватися. Відзначено, що подібні моделювання характеризуються певними обчислювальними помилками, пов'язаними з малим розміром обчислювальної комірки, відносно малою кількістю вкраплених кульок, асиметрією крайових умов та, найголовніше, неконтрольованими припущеннями про середньозважене значення проникності поблизу поверхні кульок; воно фактично означає введення додаткової міжфазної області між кульками і матрицею. Показано, що розходження між теорією та комп'ютерним експериментом можна зменшити до експериментальної похибки, якщо скористатися моделлю взаємопроникних кульок з додатковим приповерхневим шаром та з певними значеннями проникності та товщини.

Додатково показано, що отримані результати добре узгоджуються з аналітичними обчисленнями [12, 25] для малоконтрастних систем неоднорідних кульок, дозволяють відновити результати симуляцій [24] та вказати на обмеженість відомих симуляцій [26].


(підпис автора роботи) Дорош А. В.

ЛІТЕРАТУРА

1. Sihvola A. H. Electromagnetic mixing formulas and applications. – Iet, 1999. – no 47.
2. Torquato S. Random heterogeneous materials: microstructure and macroscopic properties. – Springer Science Business Media, 2013. – Vol. 16.
3. Tarascon J. M., Simon P. Electrochemical energy storage. – John Wiley Sons, 2015.
4. Anoufa M. et al. Energy harvesting in core-shell ferroelectric ceramics: Theoretical approach and practical conclusions // Journal of Applied Physics. – 2013. – Vol. 113, no 5. – P. 054104.
5. Nan C. W. Physics of inhomogeneous inorganic materials // Progress in Materials Science. – 1993. – Vol. 37, no 1. – P. 1-116.
6. Barsoukov E., Macdonald J. R. (ed.). Impedance spectroscopy: theory, experiment, and applications. – John Wiley Sons, 2005.
7. Hunter R. J. Foundations of colloid science. – Oxford University Press, 2001.
8. Morgan H., Green N. G. AC electrokinetics: colloids and nanoparticles. 2003 // Hertfordshire, England: Research Studies Press LTD. – Vol. 324.
9. Garnett J. C. M. Colors in material glasses and metal films // Trans. Roy. Soc. – 1904. – Vol. 53. – P. 385-420.
10. Bruggeman D. Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von heterogenen Substanzen. I. Dielektrizitätskonstanten und Leitfähigkeiten der Mischkörper aus isotropen Substanzen // Ann. Phys. – 1935. – Vol. 416, no 7. – P. 636-664.
11. Снарский А. Знал ли Максвелл о пороге протекания? // УФН, Успехи физических наук. – 2007. – Т. 177, № 12. – С. 1341-1344.
12. Wei E. B., Poon Y. M., Shin F. G. Effective dielectric responses of

- graded composites of the particles with a general power-law gradation profile // *Physics Letters A*. – 2005. – Vol. 336, no 2. – P. 264-270.
13. Сушко М. Я. О диэлектрической проницаемости суспензий // *ЖЭТФ*. 2007. – Т. 132, № 2. – С. 478-484.
 14. Сушко М. Я., Криськив С. К. Метод компактных групп в теории диэлектрической проницаемости гетерогенных систем // *ЖТФ*. – 2009. Т. 79, № 3. – С. 97-101.
 15. Sushko M. Ya. Effective permittivity of mixtures of anisotropic particles // *Journal of Physics D: Applied Physics*. – 2009. – Vol. 42, no 15. – P. 155410.
 16. Sushko M. Ya. Effective dielectric constant of systems of penetrable particles. У зб. “7th International Conference Physics of Liquid Matter: Modern Problems. May 27–30 . - Kyiv, Ukraine. Abstracts.” – 2016. – P. 133.
 17. Hashin Z., Shtrikman S. A variational approach to the theory of the effective magnetic permeability of multiphase materials // *Journal of applied Physics*. – 1962. – Vol. 33, no 10. – P. 3125-3131.
 18. Веселаго В. Г. Электродинамика веществ с одновременно отрицательными значениями ε и μ // *УФН*. – 1967. – Т. 92, № 7. – С. 517-526.
 19. Mackay T. G., Lakhtakia A. A limitation of the Bruggeman formalism for homogenization // *Optics Communications*. – 2004. – Vol. 234, no 1. – P. 35-42.
 20. Jeffrey D. J. Conduction through a random suspension of spheres // *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*. – The Royal Society, 1973. – Vol. 335, no 1602. – P. 355-367.
 21. Felderhof B. U., Ford G. W., Cohen E. G. D. Cluster expansion for the dielectric constant of a polarizable suspension // *Journal of Statistical Physics*. – 1982. – Vol. 28, no 1. – P. 135-164.
 22. Felderhof B. U., Ford G. W., Cohen E. G. D. Two-particle cluster integral in the expansion of the dielectric constant // *Journal of*

- Statistical Physics. – 1982. – Vol. 28, no 4. – P. 649-672.
23. Jylha L., Sihvola A. Equation for the effective permittivity of particle-filled composites for material design applications // Journal of Physics D: Applied Physics. – 2007. – Vol. 40, no 16. – P. 4966.
 24. Kärkkäinen K., Sihvola A., Nikoskinen K. Analysis of a three-dimensional dielectric mixture with finite difference method. // IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing. – 2001. – Vol. 39, no 5. – P. 1013-1018.
 25. Sihvola A., Lindell I. V. Polarizability and effective permittivity of layered and continuously inhomogeneous dielectric spheres // Journal of electromagnetic waves and applications. – 1989. – Vol. 3, no 1. – P. 37-60.
 26. Mejdoubi A., Brosseau C. Controllable effective complex permittivity of functionally graded composite materials: A numerical investigation // Journal of Applied Physics. – 2007. – Vol. 102, no 9. – P. 094105.
 27. Wessel, J. K. The handbook of advanced materials: enabling new designs. John Wiley Sons. - 2004.
 28. Ichikawa, K. Functionally graded materials in the 21st century: a workshop on trends and forecasts. – Springer Science Business Media. - 2013.
 29. Zhu X., Wang Q., Meng Z. A functionally gradient piezoelectric actuator prepared by powder metallurgical process in PNN-PZ-PT system // Journal of Materials Science Letters. – 1995. – Vol. 14, no 7. – P. 516-518.
 30. Buscaglia M. T. et al. Synthesis of BaTiO₃ Core-Shell Particles and Fabrication of Dielectric Ceramics with Local Graded Structure // Chemistry of materials. – 2006. – Vol. 18, no 17. – P. 4002 - 4010.
 31. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М., Электродинамика сплошных сред, Москва, Наука, 1982.
 32. Finkel'berg V.M., Mean field strength in an inhomogeneous medium // Sov. Phys. JETP. - 1964. – Vol. 19. – P. 494-498.
 33. Pekonen O., Kärkkäinen K., Sihvola A., Nikoskinen K. Numerical

- Testing of Dielectric Mixing Rules By FDTD Method // J. Electromagn. Waves Applicat. – 1999. – Vol. 13, no 1. – P. 67-87.
34. Rikvold P.A. and Stell G., Porosity and specific surface for interpenetrablesphere models of twophaserandom media // J. Chem. Phys. – 1985. – Vol. 82, no 2. – P. 1014-1020.
35. Delgado A. V., González-Caballero F., Hunter R. J., Koopal L. K. and Lykhema J. // Pure Appl. Chem. – 2005. Vol. 77, no 10. - P. 1753-1805.
36. М. Я. Сушко, А. В. Дорош. Електродинамічна гомогенізація дисперсних систем неоднорідних частинок. У зб. “Електроніка та інформаційні технології”. Матеріали VIII-ої Українсько-польської науково-практичної конференції (ЕЛІТ-2016), 27–30 серпня 2016 р., Львів–Чинадієво, Україна. – Львів, ЛНУ, 2016, с. 183–184.