

Testování matematických modelů pro predikci relativní permitivity nanokompozitního systému

Ondřej Michal, Jaroslav Hornak, Václav Mentlík

Katedra technologií a měření

Fakulta elektrotechnická

Západočeská univerzita v Plzni

mionge@ket.zcu.cz

Testing of Mathematical Formulas for Prediction of Relative Permittivity of Nanodielectrics

Abstract – Composite materials and determination of their properties is a much-discussed topic not only in the field of the high voltage insulation systems. In this field, one of the most important parameters which may be determined is relative permittivity, also known as the dielectric constant. In some cases, few mathematical formulas, e.g. linear, Birchak's, Landau-Lifshitz-Looyeng's or Lichtenecker-Rother's, were valid. The basic problem with a usage of these formulas occurred with the application of filler with nano- dimensions, where the dielectric properties are affected by interaction zone between the surface of the filler and the matrix. The main aim of this paper is to use these formulas for calculations at elevated temperatures and compare them with the results from prepared samples of nanocomposite material.

Keywords – Composite; Epoxy; Nanoscale; Power Law Model; Relative Permittivity

I. ÚVOD

Nanokompozitní materiály jsou stále relativně nové a do detailu neprozkoumané materiály. Interakce plniva s epoxidem na úrovni nanometrů je stále obtížné fyzikálně popsat a to platí kupříkladu i u predikce relativní permitivity finálního kompozitního systému. [1] V běžném mikrokompozitním systému jsou již dlouhou dobu známé určité modely či formule pro predikci relativní permitivity finálního kompozitního systému, které pracují na základě znalosti relativní permitivity jednotlivých složek. Mezi tyto modely patří například Lineární model mísení, Birchakův model, Lichtenecker-Rocker a další. Každý tento model přistupuje k predikci svým způsobem a zahrnuje například i tvar daných částic. [2-3]

II. POPIS EXPERIMENTU

Úkolem toho experimentu bylo ověření funkčnosti vybraných modelů na připravených nanokompozitních materiálech. Tento nanokompozitní materiál se skládal z na vzduchu tvrditelné epoxidové pryskyřice EC 141 a nanočástic Oxidu Hořečnatého v různých plněních (1%, 3%, 5%, 10%, 20%, 30%). Byly také připraveny vzorky čistého epoxidu pro zjištění reálné hodnoty relativní permitivity.

A. Vybrané matematické modely

Pro ověření byly vybrány jak základní modely, tak modely zahrnující i tvar částic plniva. Mezi základní vybraný model patří Lineární model mísení, který je popsán lineárním přechodem mezi hodnotami relativní permitivity jednotlivých složek na

základě jejich poměru. Dále byly testovány modely „Power-Law“, které zahrnují i tvar daných částic. Tyto modely mají obecný předpis znázorněn rovnicí (1).

$$\varepsilon_c^\beta = \varphi \varepsilon_p^\beta + (1-\varphi) \varepsilon_m^\beta, \quad (1)$$

kde ε_c , ε_p a ε_m jsou relativní permitivity a to celková, plniva a matrice. Parametr φ znázorňuje poměr plniva (např. 30% = 0,3) a β je bezrozměrný parametr, který zahrnuje tvar a orientaci částic. Na základě parametru β byly poté provedeny modifikace, které dnes známe pod jejich názvy a to Birchak (3), kde β je 1/2 a Landau-Lifshitz-Looyenga (4), kde β je rovno 1/3.

$$\varepsilon_c = \varphi \varepsilon_p + (1-\varphi) \varepsilon_m, \quad (2)$$

$$\varepsilon_c^{1/2} = \varphi \varepsilon_p^{1/2} + (1-\varphi) \varepsilon_m^{1/2}, \quad (3)$$

$$\varepsilon_c^{1/3} = \varphi \varepsilon_p^{1/3} + (1-\varphi) \varepsilon_m^{1/3}, \quad (4)$$

Zavedení plniv v řádech nanometrů má za následek větší vliv mezifázové oblasti mezi maticí a nanoplňivem. Tato mezifáze má hlavní podíl na změně vlastností výsledného nanokompozitního systému. [1] Abychom vzali v úvahu mezifázovou oblast, lze ji zavést do modelu jako další, třetí podílové plnivo. Díky tomuto dostaneme rovnici v podobě (5).

$$\varepsilon_c^\beta = \varphi_p \varepsilon_p^\beta + \varphi_i \varepsilon_i^\beta + (1-\varphi_i-\varphi_p) \varepsilon_m^\beta, \quad (5)$$

kde ε_i je relativní permitivita mezifázové oblasti a φ_i je její podíl v nanokompozitním systému. Podíl mezifázové oblasti je závislý na podílu nanoplňiva a poměru velikosti částic k tloušťce mezifázové oblasti k a lze ji vyjádřit pomocí (6).

$$\varphi_i = k \varphi_p (1-\varphi_p) / (1+k \varphi_p) \quad (6)$$

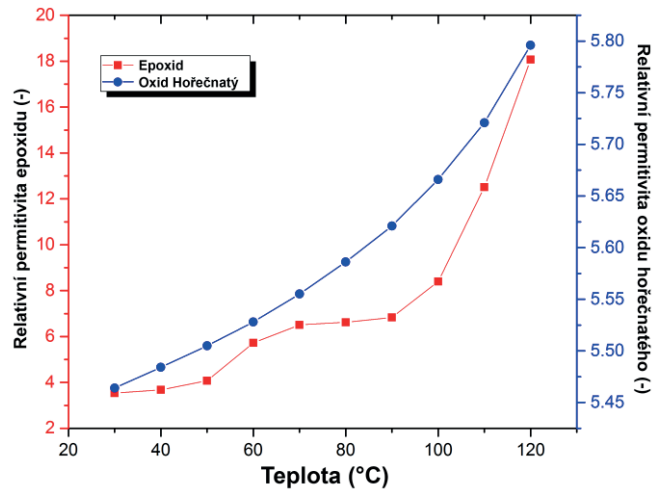
Autoři článku [4] uvádějí, že při užití epoxidové pryskyřice lze v oblasti mezifáze najít převážně vzduchové bubliny. Na základě tohoto tvrzení lze tedy uvažovat relativní permitivitu mezifáze $\varepsilon_i = 1$. Tloušťku mezifázové oblasti nelze jednoznačně určit a pro účel tohoto experimentu byla zvolena hodnota rovnající se velikosti zvolených nanočástic. Jelikož jsou použity sférické nanočástice byl parametr β byl zvolen 1/3. Poté lze tedy zapsat finální podobu rovnice ve tvaru (7) a (8). Pro účely experimentu byl tento model pojmenován mezifázovým modelem.

$$\varepsilon_c^{1/3} = \varphi_p \varepsilon_p^{1/3} + (1-\varphi_p) \varepsilon_m^{1/3} + \varphi_i (1^{1/3} - \varepsilon_m^{1/3}), \quad (7)$$

$$\varphi_i = \varphi_p (1-\varphi_p) / (1+\varphi_p) \quad (8)$$

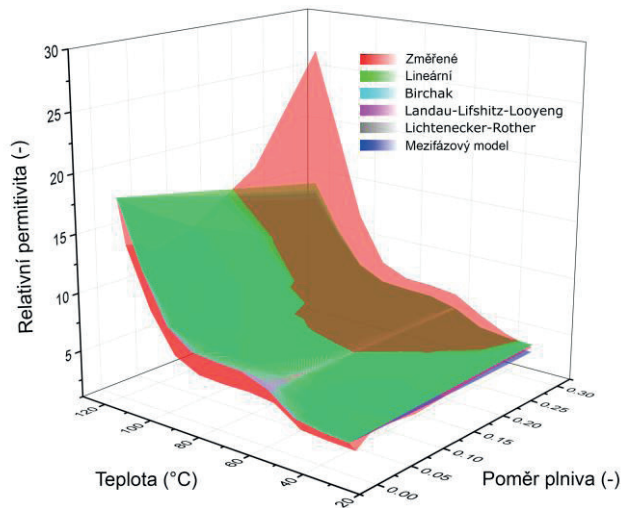
B. Metody a vyhodnocení

Pro měření relativní permitivity byl použit automatický dielektrický analyzátor společnosti Tettex Instruments. Měření probíhalo při napětí 500 V, frekvenci 50 Hz a v teplotním rozsahu 30 – 120 °C. Změřené hodnoty relativní permitivity čistých epoxidových vzorků a samotných nanočástic oxidu hořečnatého byly poté použity pro samotnou kalkulaci modelů.

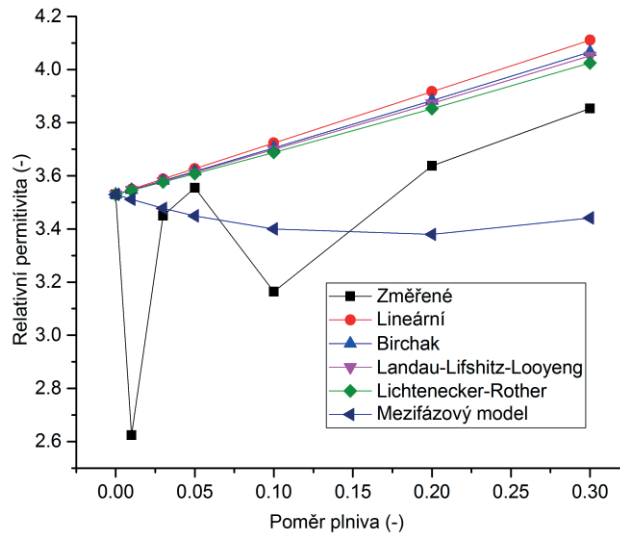


Obrázek I. Teplotní závislost relativní permitivity epoxidu a oxidu hořčnatého

Na první pohled lze vidět z obrázku I. výrazný vliv teploty na relativní permitivitu epoxidu. Na základě tohoto měření lze již konstatovat, že uvedené modely nebudou platné v oblasti vyšších teplot, kdy dochází k zvýšení relativní permitivity epoxidu nad hodnoty oxidu hořčnatého. Toto tvrzení potvrzuje i obrázek III.



Obrázek II. Porovnání testovaných modelů se změřenými daty



Obrázek III. Porovnání testovaných modelů se změřenými daty (30 °C)

Na obrázku III lze vidět určitou korelaci změřených hodnot se získanými hodnotami mezifázového modelu. Pro hodnoty poměru plniva od 0,2 a vyšší lze ovšem vidět určitou korelaci s hodnotami klasických Power-Law modelů. Příčinou může být tvorba mikro shluků, které mají za následek potlačení vlivu mezifázové oblasti.

III. ZÁVĚR

Tento experiment si kládí za cíl ověřit stávající modely pro predikci relativní permitivity na reálných vzorcích nanokompozitního systému. Na základě prezentovaných výsledků lze říci, že určitá korelace s modely je viditelná při vyšších hodnotách plnění. Dále lze uvést, že interakce mezifáze jednoznačně ovlivňuje hodnotu relativní permitivity. Pro určení správného predikčního modelu pro nanokompozity je ovšem potřeba určit patřičné parametry, které by popsaly vliv mezifázové oblasti a tím zlepšily predikční model, který bude platný i pro nanokompozitní systémy. Nejvíce kritické je vyšetřit skutečnou velikost mezifáze dle poměru plnění a druhu nanočástic.

PODĚKOVÁNÍ

Tento článek vznikl za podpory interního projektu na podporu studentských vědeckých konferencí SVK-2018-005, s podporou Ministerstva školství, mládeže a tělovýchovy ČR v rámci projektu RICE – Nové technologie a koncepce pro inteligentní systémy, číslo projektu LO1607, a byl také podpořen grantem Studentské grantové soutěže ZČU č. SGS-2018-016 Diagnostika a materiály v elektrotechnice.

LITERATURA

- [1] T. Tanaka, G. C. Montanari and R. Mulhaupt, "Polymer nanocomposites as dielectrics and electrical insulation-perspectives for processing technologies, material characterization and future applications," in IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, vol. 11, no. 5, pp. 763-784, Oct. 2004. doi: 10.1109/TDEI.2004.1349782
- [2] M. G. Todd and F. G. Shi, "Complex permittivity of composite systems: a comprehensive interphase approach," in IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, vol. 12, no. 3, pp. 601-611, June 2005. doi: 10.1109/TDEI.2005.1453466
- [3] Leão, T.P. & Perfect, E & Tyner, John. "Evaluation of lichtenecker's mixing model for predicting effective permittivity of soils at 50 MHZ," Transactions of the ASABE. 58. 83-91, 2015. doi: 10.13031/trans.58.10720
- [4] Ezzat, M & A Sabiha, N & M Izzularab, bullet. "Accurate model for computing dielectric constant of dielectric nanocomposites," Applied Nanoscience. 2014. 331-338. doi: 10.1007/s13204-013-0201-5