

УДК 537.2

РЕЛАКСАЦИОННЫЕ ПРОЦЕССЫ В НЕУПОРЯДОЧЕННЫХ ГЕТЕРОГЕННЫХ ДИЭЛЕКТРИКАХ: СТАТИСТИЧЕСКИЕ СМЕСИ¹

© 2011 г. А. В. Турик, М. Ю. Родинин

Южный федеральный университет, Ростов-на-Дону

E-mail: turik@sfedu.ru

Поступила в редакцию 28.04.2010 г.

Установлено, что средняя частота релаксации диэлектрических потерь (проводимости) статистических смесей значительно (в ряде случаев на несколько порядков) превышает частоту релаксации диэлектрической проницаемости. Показано, что перколяционное увеличение диэлектрической проницаемости и проводимости происходят при различных концентрациях компонентов, соответствующих переходам диэлектрик–проводник и проводник–диэлектрик соответственно.

Перколяционный переход диэлектрик–проводник в неупорядоченных гетерогенных системах с недебаевскими спектрами, сопровождающийся гигантским увеличением статической диэлектрической проницаемости (ДП), издавна привлекает внимание исследователей. В частности, подробно исследованы двухкомпонентные статистические смеси [1]. Однако два других, не менее интересных эффекта – гигантское увеличение эффективной проводимости и, главное, гигантское различие средних частот релаксации эффективной ДП ω_r^ε и эффективной проводимости ω_r^γ композита остались вне поля зрения исследователей. Они даже не упоминаются в [2], посвященной исследованию двухкомпонентных двумерных систем на пороге перколяции, и в монографии [3]. Настоящая работа посвящена теоретическому рассмотрению и интерпретации этих эффектов.

Рассмотрена трехмерная двухкомпонентная статистическая смесь, представляющая собой систему хаотически расположенных в пространстве сферических частиц, находящихся под действием однородного внешнего гармонического электрического поля напряженности E и частоты ω . Для совместного изучения диэлектрических свойств и проводимости использовался самосогласованный метод эффективной среды [4, 5]. Согласно этому методу, для каждой сферы с ДП $\varepsilon^{(i)}$, погруженной в однородную среду с подлежащей определению эффективной ДП ε , рассчитываются внутренние электрические поля $E_i = 3\varepsilon E / (2\varepsilon + \varepsilon^{(i)})$ и индукции $D_i = \varepsilon^{(i)} E_i$ ($i = 1, 2$). Усреднение E_i и D_i по ансамблю при учете стандартного для метода эффективной среды требования отсутствия полей

рассеяния позволяет получить для эффективной ДП-системы формулы

$$\varepsilon = A + B, \quad A = \frac{(3\theta_1 - 1)\varepsilon^{(1)} + (3\theta_2 - 1)\varepsilon^{(2)}}{4}, \quad (1)$$

$$B = \left(A^2 + \frac{\varepsilon^{(1)}\varepsilon^{(2)}}{2} \right)^{1/2},$$

где θ_1 и $\theta_2 = 1 - \theta_1$ – объемные концентрации первого и второго компонентов смеси соответственно.

Исследование перколяционных явлений требует использования в выражениях (1) по аналогии со случаем двухкомпонентной системы с последовательно расположенными слоями [6, 7] комплексных ДП для обоих компонентов $\varepsilon^{(1,2)} = \varepsilon_{1,2} - i\gamma_{1,2}/\omega$. Для простоты ДП $\varepsilon_{1,2}$ и проводимости $\gamma_{1,2}$ предполагались постоянными (независящими от частоты ω). Наличие комплексных ДП $\varepsilon^{(1,2)}$ обуславливает комплексную форму эффективной ДП-смеси $\varepsilon = \varepsilon' - i\varepsilon'' = \varepsilon' - i\gamma/\omega$ и позволяет рассчитать концентрационные и частотные зависимости действительной и мнимой частей ДП (ε' и ε'') и проводимости (γ' и γ'') композита. Для разделения действительной и мнимой частей использовался программный пакет Mathematica 5.2; результаты расчетов контролировались специальной программой на основе формулы Муавра. В качестве объекта рассмотрения взята статистическая смесь из неполяризованной сегнетокерамики ПКР-73 ($\varepsilon_1/\varepsilon_0 = 3200$ [8], $\gamma_1 = 10^{-12}$ (Ом м)⁻¹) и полиэтилена ($\varepsilon_2/\varepsilon_0 = 2.5$ [9] с повышенной проводимостью $\gamma_2 = 10^{-8}$ (Ом м)⁻¹; ε_0 – ДП вакуума). Как показали расчеты, дальнейшее увеличение γ_2 с целью моделирования металлической проводимости не приводит к качественному изменению поведения системы. Результаты выполненных компьютерных расчетов представлены на рис. 1 и 2.

¹ VI Международный семинар по физике сегнетоэластиков, Воронеж, Россия, 22–25 сентября 2009 г.

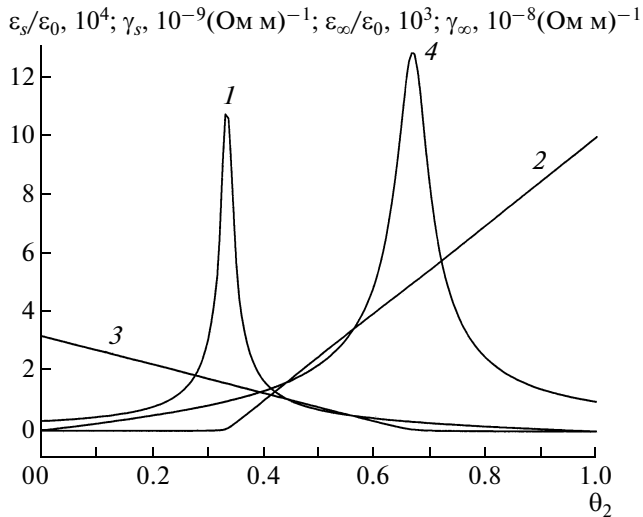


Рис. 1. Статические ϵ_s/ϵ_0 (1), γ_s (2) и высокочастотные $\epsilon_\infty/\epsilon_0$ (3), γ_∞ (4) диэлектрические проницаемости и проводимости статистической смеси ПКР-73-полиэтилен в зависимости от концентрации проводящего компонента.

Рис. 1 иллюстрирует известный результат [1], что в точке $\theta_2 = \theta_c^\epsilon = 1/3$, соответствующей переходу диэлектрик–проводник, происходит гигантское увеличение статической (соответствующей $\omega \rightarrow 0$) ДП ϵ_s ; при $\gamma_1/\gamma_2 \rightarrow 0$ $\epsilon_s \rightarrow \infty$. Физический механизм расходимости статической ДП хорошо известен. При фазовом переходе диэлектрик–проводник на пороге перколяции θ_c^ϵ образуется бесконечный проводящий кластер из близко расположенных частиц с большой проводимостью, на границах которых происходит накопление электрического заряда (максвелл-вагнеровская поляризация, связанная с максвелл-вагнеровской релаксацией). А так как толщина непроводящих (или слабо проводящих) слоев между проводящими частицами (кластерами) близка к нулю, то реализуется ситуация подобная наблюдаемой в слоистых структурах [6, 7]. Накопление объемного заряда на границах компонентов используется для создания материалов с очень большой ДП и гигантской диэлектрической релаксацией.

Гигантское увеличение ДП-композиата наблюдается только на низких частотах. При увеличении же частоты ω (рис. 2) в системе происходят гигантская диэлектрическая релаксация и гигантская релаксация проводимости (диэлектрических потерь). Диэлектрический спектр статистической смеси имеет недебаевский характер с широким распределением времен релаксации, так как физические константы эффективной среды, в которую погружены хаотически расположенные частицы первого и второго компонентов

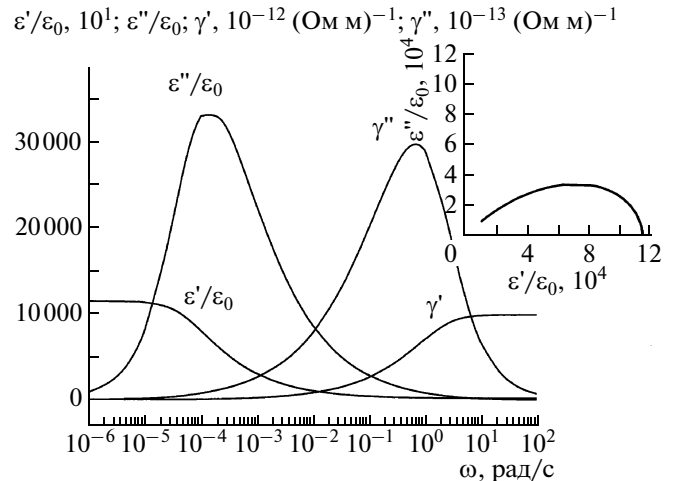


Рис. 2. Частотные зависимости действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости (ϵ' и ϵ'') и проводимости (γ' и γ'') статистической смеси ПКР-73-полиэтилен при концентрации проводящего компонента $\theta_2 = 1/3$, соответствующей порогу перколяции переход диэлектрик–проводник. На вставке показана диаграмма Коула–Коула.

смеси, зависят от частоты ω электрического поля. Среднее время релаксации ДП $\tau^\epsilon = 1/\omega_r^\epsilon$ зависит от концентраций и соотношений ДП и проводимостей компонентов и критически увеличивается при приближении к порогу перколяции θ_c^ϵ . Однако при низких ($\omega \ll \omega_r^\epsilon$) и очень высоких ($\omega \gg \omega_r^\epsilon$) частотах дебаевский характер спектра восстанавливается.

Последнее обстоятельство приводит к тому, что в отличие от диэлектриков с дебаевскими спектрами средняя частота релаксации эффективной проводимости статистических смесей $\omega_r^\gamma \gg \omega_r^\epsilon$ на несколько порядков. Наиболее четко средние частоты релаксации ω_r^ϵ и ω_r^γ могут быть определены по максимумам мнимых частей ДП $\epsilon''(\omega)$ и проводимости $\gamma''(\omega)$ после исключения из них сингулярных (расходящихся при $\omega \rightarrow 0$ и $\omega \rightarrow \infty$ соответственно) частей. Частотные зависимости ϵ и γ , а также диаграмма Коула–Коула $\epsilon''(\epsilon')$ показаны на рис. 2. Вблизи порога перколяции $\theta_2 = \theta_c^\gamma = 2/3$ наблюдалось гигантское увеличение эффективной проводимости, связанное с перераспределением электрических полей внутри компонентов при увеличении частоты измерительного поля. Если на низких частотах внутренние электрические поля распределяются соответственно проводимостям, то на высоких частотах – соответственно ДП. Вблизи порога перколяции $\theta_c^\gamma = 2/3$ возникает бесконечный ке-

рамический кластер с очень тонкими прослойками проводящего компонента с малой ДП. Эти прослойки окружены сегнетокерамикой с очень высокой ДП, на них возникают сильные электрические поля, а их высокая проводимость благоприятствует увеличению эффективной проводимости γ' статистической смеси.

Для возникновения высокочастотной релаксации необходимо наличие конечной области распределения времен релаксации с вертикальной границей со стороны малых времен релаксации. Зависимости ω_r^ε и ω_r^γ от концентрации компонентов статистической смеси немонотонны и определяются различием скоростей натекания объемного заряда и установления абсорбционного тока; ω_r^ε имеет глубокий минимум на порог перколяции перехода диэлектрик—проводник, ω_r^γ — максимум на пороге перколяции перехода проводник—диэлектрик. Наибольшая величина $\omega_r^\gamma/\omega_r^\varepsilon$ достигается на пороге перколяции перехода диэлектрик—проводник.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Efros A.L., Shklovskii B.I.* // Phys. Status. Solidi. B. 1976. V. 76. № 2. P. 475.
2. *Tuncer E., Nettelblad B., Gubanski S.M.* // J. Appl. Phys. 2002. V. 92. № 8. P. 4612.
3. *Харитонов Е.В.* Диэлектрические материалы с неоднородной структурой. М.: Радио и связь, 1983. 128 с.
4. *Bruggeman D.A.G.* // Ann. Phys. 1935. V. 24. P. 636.
5. *Оделевский В.И.* // ЖТФ. 1951. Т. 21. С. 667.
6. *Хунпель А.Р.* Диэлектрики и волны: Пер. с англ. М.: Изд-во иностр. лит. 1960. 440 с.
7. *Turik A.V., Radchenko G.S.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2002. V. 35. № 11. P. 1188.
8. *Данцигер А.Я., Разумовская О.Н., Резниченко Л.А., Дудкина С.И.* Высокоэффективные пьезокерамические материалы. Оптимизация поиска. Ростов н/Д: Пайк, 1995. 94 с.
9. *Levassort F., Lethiecq M., Millar C., Pourcelot L.* // Trans. Ultrason., Ferrorel., and Freq. Control, 1998. V. 45. № 6. P. 1497.