



NUMMERICAL SIMULATIONS BY FINITE ELEMENT METHOD TO DETERMINATE THE DIELECTRIC CONSTANT OF HOLLOW-GLASS MICROSPHERE FILLED EPOXY-MATRIX COMPOSITES

Nguyen Thi Huong Giang ^{*}, Vu Nguyen Thanh

University of Transport and Communications, No 3 Cau Giay Street, Hanoi, Vietnam

ARTICLE INFO

TYPE: Research Article

Received: 10/08/2022

Revised: 09/11/2022

Accepted: 14/12/2022

Published online: 15/12/2022

<https://doi.org/10.47869/tcsj.73.9.8>

^{*} *Corresponding author*

Email: nguyenthihuonggiang@utc.edu.vn; Tel: +84 989784281

Abstract. Hollow-glass microsphere filled epoxy-matrix composite materials are of great interest to research in recent times because in addition to applications as marine buoyancy materials, also used as low-density materials in electronics. This paper studies numerical simulations by finite element method to determine the dielectric constant of hollow-glass microsphere filled epoxy-matrix composites (syntactic foams), when the volume ratio of hollow-glass microsphere varies from 0 to 60%, glass wall thickness and outer radius change. Numerical models built with periodic materials and defined by an elementary cell like that simple cubic, body-centered cubic, and face-centered cubic with the support of Cast3m open source software. On the elementary cell, the periodic conditions for micro displacement field and micro electric potential field are satisfied. Then applied calculations to four types of hollow-glass microspheres are K1, K20, S38HS and S60HS manufactured in 3M China company. The numerical results are compared with the results of the Hashin-Strikman bounds, with the analytical results and the experimental results of the previous studies to check the reliability. The results of this study add to the theory of calculation and prediction of effective dielectric constant of syntactic foams.

Keywords: dielectric constant, hollow glass microsphere, syntactic foam.

© 2022 University of Transport and Communications



MÔ PHỎNG SỐ PTHH XÁC ĐỊNH HẰNG SỐ ĐIỆN MÔI CỦA VẬT LIỆU COMPOSITE VỚI CỐT LÀ VI CẦU THỦY TINH RỖNG NỀN EPOXY

Nguyễn Thị Hương Giang*, Vũ Nguyên Thành

¹Trường Đại học Giao thông vận tải, Số 3 Cầu Giấy, Hà Nội, Việt Nam

THÔNG TIN BÀI BÁO

CHUYÊN MỤC: Công trình khoa học

Ngày nhận bài: 10/08/2022

Ngày nhận bài sửa: 09/11/2022

Ngày chấp nhận đăng: 14/12/2022

Ngày xuất bản Online: 15/12/2022

<https://doi.org/10.47869/tcsj.73.9.8>

* Tác giả liên hệ

Email: nguyenthihuonggiang@utc.edu.vn; Tel: 0989784281

Tóm tắt. Vật liệu Composite có cốt liệu là vi cầu thủy tinh rỗng nền epoxy rất được quan tâm nghiên cứu trong thời gian gần đây do ngoài những ứng dụng làm vật liệu nổi của hàng hải, nó còn được ứng dụng làm vật liệu mật độ thấp trong điện tử. Bài báo nghiên cứu xây dựng mô hình số PTHH để tính toán hằng số điện môi của vật liệu Composite có cốt liệu là vi cầu thủy tinh rỗng đặt trong nền epoxy (vật liệu bột thủy tinh), khi tỉ lệ thể tích vi cầu thủy tinh biến đổi từ 0 tới 60%, độ dày thành thủy tinh và bán kính ngoài thay đổi. Mô hình số xây dựng với vật liệu tuần hoàn có nhân tử tuần hoàn là lập phương đơn giản, lập phương tâm khối, lập phương tâm mặt với sự hỗ trợ của phần mềm có mã nguồn mở Cast3m. Trên nhân tuần hoàn, các điều kiện tuần hoàn cho cảm ứng điện trường và trường điện thế vi mô được thỏa mãn. Sau đó, áp dụng tính toán cho bốn dạng hạt của vi cầu thủy tinh là K1, K20, S38HS và S60HS sản xuất tại công ty 3M China. Kết quả số đạt được so sánh với kết quả của đường bao Hashin-Strikman, với kết quả theo công thức giải tích, kết quả thực nghiệm của các nghiên cứu trước để kiểm tra độ tin cậy. Kết quả của nghiên cứu này bổ sung thêm lý thuyết tính toán, dự báo hằng số điện môi hiệu dụng của vật liệu bột thủy tinh.

Từ khóa: hằng số điện môi, vi cầu thủy tinh, vật liệu bột thủy tinh.

1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Bọt thủy tinh là vật liệu composite gồm cốt liệu là vi cầu thủy tinh rỗng phân tán trong nền epoxy. Vi cầu thủy tinh rỗng có cấu tạo là lớp khí trơ bên trong và lớp thủy tinh cứng bên ngoài. Một số lượng lớn các nghiên cứu đã được công bố về tính chất cơ – lý của loại vật liệu này. Các đặc tính nén được nghiên cứu rất chi tiết bởi vì hầu hết các ứng dụng của bọt thủy tinh nằm trong cấu trúc của vật liệu hàng hải, nơi nén thủy tĩnh là lực phổ biến nhất tác dụng lên vật liệu [1-4]. Bọt thủy tinh còn được sử dụng làm vật liệu cách nhiệt trong việc phục hồi dầu từ các giếng dầu siêu sâu và sử dụng trong các hệ thống bảo vệ nhiệt. Các nghiên cứu về tính dẫn nhiệt có thể kể đến trong [5-7].

Ngoài ra, các ứng dụng mới của bọt thủy tinh đang được phát triển liên tục. Epoxies được sử dụng rộng rãi trong các ứng dụng điện và điện tử. Bọt thủy tinh với nền epoxy cũng được sử dụng làm vật liệu mật độ thấp trong các ứng dụng điện tử. Tuy nhiên, chỉ có một vài nghiên cứu cho tính chất điện của bọt thủy tinh và chủ yếu là thực nghiệm. Người ta thấy rằng trở kháng và góc pha tăng khi tăng tỷ lệ khối lượng của vi cầu thủy tinh trong bọt [8]. Trở kháng tăng và hằng số điện môi giảm khi tăng hàm lượng cốt liệu ở tần số 10 kHz [9]. Park và cộng sự [10] đã thử nghiệm một số bọt thủy tinh chỉ với 1 và 2% trọng lượng vi cầu thủy tinh và phát hiện ra hằng số điện môi giảm khi tăng tần số và hàm lượng phụ trong phạm vi này. Một nghiên cứu về vật liệu tổng hợp sợi thủy tinh rỗng cũng đã được tìm thấy được trong đó công bố việc bổ sung các sợi thủy tinh để làm giảm hằng số điện môi của vật liệu [11]. Trong nghiên cứu của Gupta. N và cộng sự [12], đã thực hiện các thí nghiệm đo hằng số điện môi của bọt thủy tinh khi thay đổi tỉ lệ thể tích của vi cầu là 30%; 65% và thay đổi nhiệt độ. Bailin Zhu và cộng sự [7] đã đo độ dẫn nhiệt và điện của bọt thủy tinh với bốn loại hạt khác nhau của vi cầu với tỉ lệ thể tích vi cầu thay đổi từ 0-60%.

Trong nước, các nghiên cứu về loại vật liệu này còn rất hạn chế. N. T. H. Giang trong [13] đã xây dựng công thức xấp xỉ tính hệ số dẫn nhiệt, có thể áp dụng sang các tính chất điện do các hệ số dẫn: dẫn nhiệt, dẫn nhiệt, hằng số điện môi, hệ số khuếch tán, hệ số thấm nước... có công thức toán học dạng giống nhau và đều thỏa mãn phương trình cân bằng giống nhau. Tuy nhiên với mong muốn phát triển thêm phương pháp để xác định tính chất điện của bọt thủy tinh nên bài báo này sẽ nghiên cứu xây dựng mô hình số PTHH dưới sự hỗ trợ của phần mềm Cast3m để xác định hằng số điện môi của loại vật liệu này. Mô hình vật liệu tuần hoàn dạng lập phương đơn giản, lập phương tâm khối và lập phương tâm mặt sẽ được xem xét. Kết quả số sẽ so sánh với kết quả thực nghiệm và kết quả theo các công thức giải tích của các nghiên cứu đi trước để kiểm tra độ tin cậy.

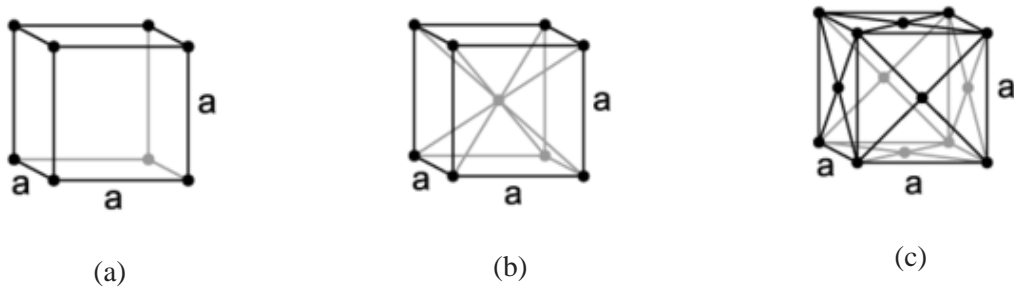
Kết quả trong bài báo này khác với kết quả trong nghiên cứu [14] của tác giả. Trong [14], tác giả xây dựng phương pháp số tính hệ số dẫn ngang của vật liệu cốt sợi đồng phương. Hệ số dẫn ngang xét trong không gian 2 chiều với nhân tử tuần hoàn hình vuông và lục giác.

2. PHƯƠNG PHÁP SỐ

Để xác định hệ số dẫn hiệu dụng của vật liệu composite, chúng ta xét trên phân tử thể tích đặc trưng (RVE). Cấu trúc vi mô của RVE là phân bố ngẫu nhiên của các cốt cũng như vết nứt (lỗ rỗng). Tuy vậy trong nhiều trường hợp RVE có cấu trúc vi mô có thể coi là phân bố tuần hoàn. Một phân bố hoàn toàn đều đặn như vậy không tồn tại trong các trường hợp thực

tế, nhưng mô hình này được coi là gần đúng, hữu ích vì nó cung cấp các giá trị giới hạn cho các thuộc tính vật liệu tổng thể khác nhau. Trong bài báo này, tác giả sử dụng mô hình phân bố tuần hoàn của RVE.

Trong mô hình vật liệu tuần hoàn, tính tuần hoàn kéo dài đến vô tận theo mọi hướng thì các điều kiện biên cần được quy định một cách chính xác. Cụ thể, các điều kiện biên phải làm sao để dẫn đến sự tuần hoàn của các trường điện dịch, trường điện trường.... Do đó, một ô đơn vị đại diện được xem xét (hay gọi là nhân tử tuần hoàn – unit cell), bao gồm các đặc tính hình học và tính chất vật liệu tuần hoàn, cũng như tính tuần hoàn của các biến trường. Khi đó các tính chất hiệu dụng của vật rắn với cấu trúc tuần hoàn được nghiên cứu qua tính chất hiệu dụng của ô đại diện này. Một số dạng nhân tử tuần hoàn trong không gian 3 chiều thể hiện trên hình 1.



Hình 1. Một số nhân tử tuần hoàn
a - lập phương đơn giản; b - lập phương tâm khối; c - lập phương tâm mặt.

Tác dụng lên phần tử thể tích đặc trưng RVE của vật liệu nghiên cứu (Ω) trường điện trường vĩ mô \mathbf{E} .

$$\mathbf{D} = \varepsilon^{eff} \mathbf{E} \quad (1)$$

Với ε^{eff} : hằng số điện môi hiệu dụng

\mathbf{D} là cảm ứng điện trường (hay trường điện dịch), được xác định bằng trung bình của trường điện dịch vi mô trên (Ω):

$$\mathbf{D} = \langle \mathbf{d}(\mathbf{x}) \rangle_{\Omega} \quad (2)$$

Trên nhân tử tuần hoàn U , kích thước cạnh của lập phương là a , cảm ứng điện trường vi mô tuần hoàn và có dạng:

$$\mathbf{d}(\mathbf{x}) = \mathbf{d}(\mathbf{x} + n_1 a \mathbf{e}_1 + n_2 a \mathbf{e}_2 + n_3 a \mathbf{e}_3) \quad (3)$$

Do điều kiện tuần hoàn của cảm ứng điện trường vi mô, nên ta có trung bình của cảm ứng điện trường trên U bằng với trung bình của cảm ứng điện trường trên RVE.

$$\langle \mathbf{d}(\mathbf{x}) \rangle_U = \langle \mathbf{d}(\mathbf{x}) \rangle_{\Omega} = \mathbf{D} \quad (4)$$

Trường điện trường vĩ mô \mathbf{E} : $\mathbf{E} = -\nabla \varphi \quad (5)$

với φ : trường điện thế

Trên nhân tử tuần hoàn phải thỏa mãn các phương trình:

$$\nabla \cdot \mathbf{d}(\mathbf{x}) = 0 \quad \in U \quad (6)$$

$$\mathbf{d}(\mathbf{x}) = \varepsilon(\mathbf{x})\mathbf{E}(\mathbf{x}) = -\varepsilon(\mathbf{x})\nabla\varphi(\mathbf{x}) \quad \in U \quad (7)$$

Trường điện thế thỏa mãn điều kiện tuần hoàn:

$$\varphi(\mathbf{x}) = \varphi(\mathbf{x} + n_1a\mathbf{e}_1 + n_2a\mathbf{e}_2 + n_3a\mathbf{e}_3) \quad \in U \quad (8)$$

Bài báo xây dựng mô hình số PTHH dưới sự hỗ trợ của phần mềm có mã nguồn mở Cast3m. Cũng như các phương pháp số sử dụng phần tử hữu hạn khác, các bước chính trong bài toán tính hằng số điện môi gồm các bước:

- Thông số cơ bản của bài toán (bài toán điện, đẳng hướng).
- Thiết lập lưới phần tử hữu hạn, chọn phần tử là tam giác.
- Đưa hằng số điện môi của các pha vào và thiết lập ma trận độ cứng của các hằng số điện môi.
- Đặt tải, đưa trường điện trường vĩ mô \mathbf{E} vào và điều kiện tuần hoàn với trường điện thế φ .
- Xuất kết quả là trường điện thế trên nhân tuần hoàn.
- Tính cảm ứng điện trường trên nhân tuần hoàn theo công thức (7) và trung bình của cảm ứng điện trường theo công thức (4).
- Áp dụng công thức (1) tính ra hằng số điện môi hiệu dụng của vật liệu.

3. ÁP DỤNG VÀ THẢO LUẬN

Để áp dụng tính toán trên vật liệu bột thủy tinh, tác giả sử dụng những thông tin về các dạng hạt vi cầu thủy tinh rỗng trong bài báo [7]. Bốn dạng hạt với các kí hiệu là K1, K20, S38HS và S60HS sản xuất tại công ty 3M China.

Tab 1. Tính chất vật lý của vi cầu thủy tinh.

	Mật độ (g/cm ³)	Bán kính ngoài (μm)	Độ dày vỏ (μm)	Hằng số điện môi
K1	0.125	32.5	0.54	1.22
K20	0.200	32.5	0.88	1.36
S38HS	0.380	20	1.05	1.69
S60HS	0.600	15	1.29	2.10

Tại tần số 1 MHz và nhiệt độ 10°C, hằng số điện của epoxy 4.641, thủy tinh 5.6 và khí 1. Đưa các thông số này vào tính toán và cho tỉ lệ thể tích vi cầu thủy tinh v_{23} thay đổi từ 0 – 60%, ta nhận được kết quả như trên hình 2-4 với kết quả tính toán số cho nhân tử tuần hoàn là lập phương đơn giản (SC), lập phương tâm khối (BCC), lập phương tâm mặt (FCC) của vật liệu bột thủy tinh. Dễ nhận thấy, khi tỉ lệ thể tích vi cầu thủy tinh tăng thì hằng số điện môi giảm, trừ vi cầu K1 khi tỉ lệ thể tích lớn hơn 50% thì kết quả thực nghiệm lại tăng. Kết quả thực nghiệm (TN) ở trên đồ thị dựa là kết quả thực nghiệm trong công bố của Bailin Zhu và cộng sự [7].

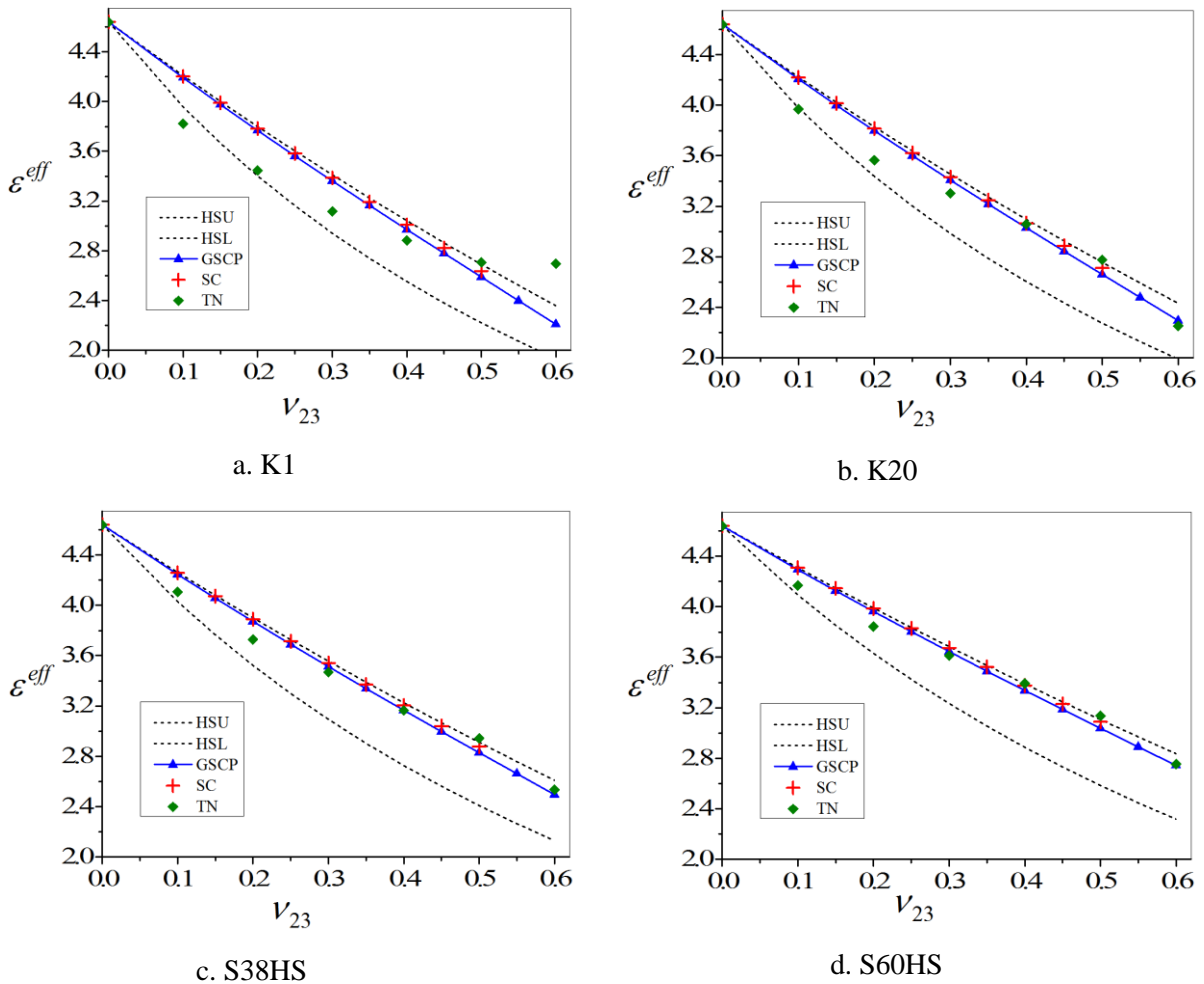
Kết quả tính toán số của hằng số điện môi hiệu dụng của vật liệu bột thủy tinh so sánh với đường bao Hashin –Strikman (HS) [15]. Công thức đường bao được biểu diễn:

$$HSL = P(\varepsilon_{\min}) \leq \varepsilon^{eff} \leq P(\varepsilon_{\max}) = HSU \quad (9)$$

với
$$\varepsilon_{\min} = \min \{ \varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3 \}; \varepsilon_{\max} = \max \{ \varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3 \} \quad (10)$$

$$P(\varepsilon) = \left(\frac{v_1}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon} + \frac{v_2}{\varepsilon_2 + 2\varepsilon} + \frac{v_3}{\varepsilon_3 + 2\varepsilon} \right)^{-1} - 2\varepsilon \quad (11)$$

Trong đó: $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3$ - hằng số điện môi của epoxy, thủy tinh và khí; v_1, v_2, v_3 - tỉ lệ thể tích của epoxy, thủy tinh và khí.



Hình 2. Hằng số điện môi của vật liệu bột thủy tinh với nhân tử tuần hoàn lập phương đơn giản.

Ngoài ra kết quả số còn được so sánh với kết quả giải tích GSCP được tác giả xây dựng trong tài liệu [13]. ε^{eff} là nghiệm của phương trình sau:

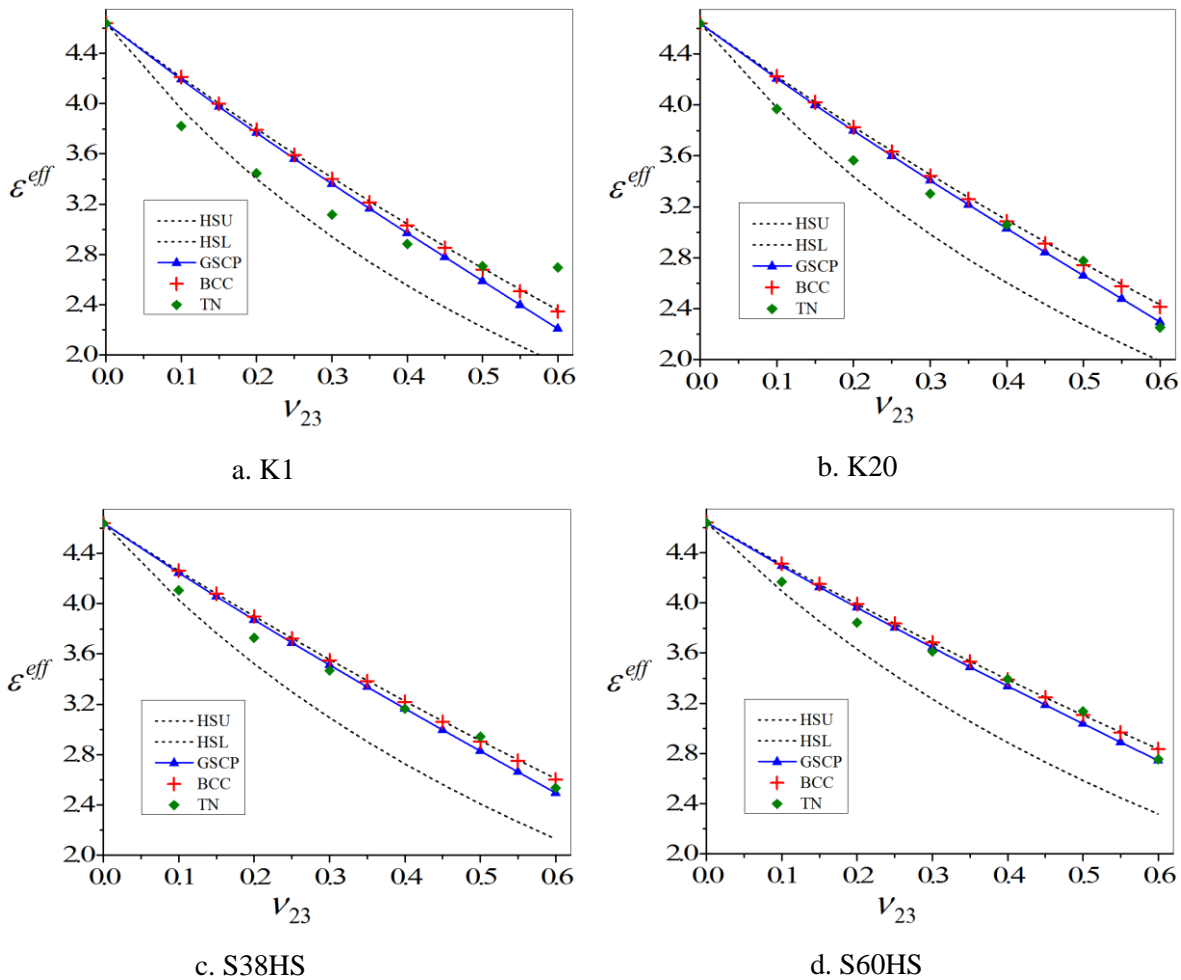
$$(1 - \phi^M) \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon^{eff}}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon^{eff}} + \phi^M \frac{\varepsilon_{EI} - \varepsilon^{eff}}{\varepsilon_{EI} + 2\varepsilon^{eff}} = 0 \quad (12)$$

với

$$\varepsilon_{EI} = \left(\frac{v_1'}{3\varepsilon_1} + \frac{v_2'}{\varepsilon_2 + 2\varepsilon_1} + \frac{v_3'}{\varepsilon_3 + 2\varepsilon_1} \right)^{-1} - 2\varepsilon_1 \quad (13)$$

$$v_2' = \frac{v_2}{\phi^M}; \quad v_3' = \frac{v_3}{\phi^M}; \quad v_1' = 1 - v_2' - v_3'$$

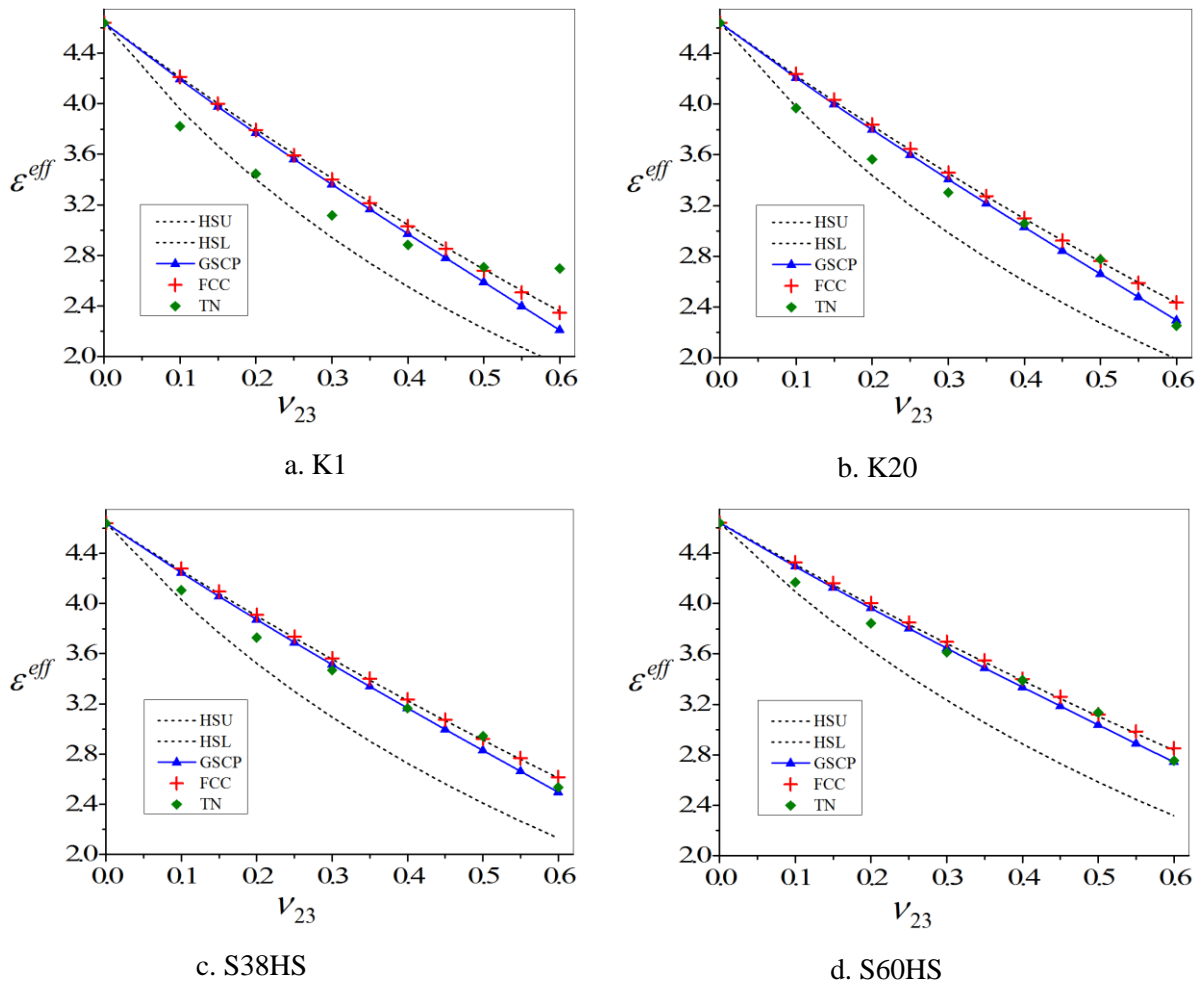
ϕ^M : tỉ lệ thể tích lớn nhất có thể của vi cầu thủy tinh trong vật liệu bột thủy tinh. Với vật liệu không gian phân bố ngẫu nhiên theo [16] ta có $\phi^M = 0.64$.



Hình 3. Hằng số điện môi của vật liệu bột thủy tinh với nhân tử tuần hoàn lập phương tâm khối.

So sánh các kết quả trên đồ thị từ hình 2-4 ta thấy: kết quả số, kết quả theo công thức giải tích và thực nghiệm rất sát nhau, nhất là đối với vi cầu K20, S38HS, S60HS và nằm trong giới hạn của đường bao Hashin-Strikman. Tuy nhiên chỉ có vi cầu K1, khi tỉ lệ thể tích nhỏ hơn 20% hoặc lớn hơn 50% thì kết quả thực nghiệm lại nằm ra ngoài đường bao và xa so với kết quả số và công thức giải tích. Điều đó có thể xảy ra do trong lý thuyết ta chưa tính đến sự ảnh hưởng của các lỗ rỗng, cũng như các yếu tố ngoại cảnh khác tác động đến kết quả thực

nghiệm. Dù vậy, phương pháp số tác giả xây dựng ở trên có thể dùng để dự đoán hằng số điện môi hiệu dụng của vật liệu bột thủy tinh với độ tin cậy cao nhất là đối với các vi cầu K20, S38HS, S60HS.



Hình 4. Hằng số điện môi của vật liệu bột thủy tinh với nhân tử tuần hoàn lập phương tâm mặt.

4. KẾT LUẬN

Trong bài báo này, nhóm tác giả đã xây dựng mô hình số sử dụng phần tử hữu hạn dưới sự hỗ trợ của phần mềm Cast3m để tính hằng số điện môi hiệu dụng của vật liệu bột thủy tinh với các nhân tử tuần hoàn lập phương, lập phương tâm khối và lập phương tâm mặt. Kết quả số đạt được so sánh với đường bao Hashin-Strikman, kết quả thực nghiệm và kết quả theo công thức giải tích, thể hiện độ tin cậy cao khi các kết quả gần sát nhau và nằm trong giới hạn của đường bao. Điều đó giúp cho chúng ta có thêm công cụ để dự báo hằng số điện môi hiệu dụng của vật liệu bột thủy tinh.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Trường đại học Giao thông vận tải trong đề tài mã số T2022-CB-004.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] P. Bunn, J. T. Mottram, Manufacture and compression properties of syntactic foams, *Composites*, 24 (1993) 565-571. [https://doi.org/10.1016/0010-4361\(93\)90270-i](https://doi.org/10.1016/0010-4361(93)90270-i)
- [2] N. Gupta, Kishore, E. Woldesenbet, S. Sankaran, Studies on compressive failure features in syntactic foam material, *Journal of Materials Science*, 36 (2001) 4484-4491. <https://doi.org/10.1023/A:1017986820603>
- [3] L. Bardella, F. Genna, On the elastic behaviour of syntactic foams, *International Journal of Solids and Structures*, 38 (2001) 7235-7260. [https://doi.org/10.1016/S0020-7683\(00\)00228-6](https://doi.org/10.1016/S0020-7683(00)00228-6)
- [4] C. S. Karthikeyan, S. Sankaran, Kishore, Elastic behaviour of plain and fibre-reinforced syntactic foams under compression, *Materials Letters*, 58 (2004) 995-999. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2003.08.012>
- [5] T. C. Lin, N. Gupta, A. Talalayev, Thermoanalytical characterization of epoxy matrix-glass microballoons syntactic foams, *Journal of Materials Science*, 44 (2009) 1520-1527. <https://doi.org/10.1007/s10853-008-3074-3>
- [6] Y. Qiao, X. Wang, X. Zhang, Z. Xing, Thermal conductivity and compressive properties of hollow glass microsphere filled epoxy-matrix composites, *Journal of Reinforced Plastic and Composites*, 0 (2015), 1-9. <https://doi.org/10.1177/0731684415592172>
- [7] B. Zhu, J. Ma, J. Wang, J. Wu, D. Peng, Thermal, dielectric and compressive properties of hollow glass microsphere filled epoxy-matrix composites, *Journal of Reinforced Plastic and Composites*, 31 (2012) 1311-1326. <https://doi.org/10.1177/0731684412452918>
- [8] M. Shahin, M. A. H. Abdallah, A. M. Zihlif, R. Farris, Dielectric properties of epoxy-glass microballoons composite, *Journal of Polymer Materials*, 12 (1995) 151-156.
- [9] M. Shahin, M. A. H. Abdallah, A. M. Zihlif, Temperature dependence of electrical properties of epoxy-glass microballoon composite, *Journal of Polymer Materials*, 13 (1996) 253-257.
- [10] S. J. Park, F. L. Jin, C. Lee, Preparation and physical properties of hollow glass microspheres-reinforced epoxy matrix resins, *Materials Science and Engineering A*, 402 (2005) 335-340. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2005.05.015>
- [11] S. M. Bleay, L. Humberstone, Mechanical and electrical assessment of hybrid composites containing hollow glass reinforcement, *Composites Science and Technology*, 59 (1999) 1321-1329. [https://doi.org/10.1016/s0266-3538\(98\)00170-5](https://doi.org/10.1016/s0266-3538(98)00170-5)
- [12] N. Gupta, S. Priya, R. Islam, W. Ricci, Characterization of Mechanical and Electrical Properties of Epoxy-Glass Microballoon Syntactic Composites, *Ferroelectrics*, 345 (2006) 1-12. <https://doi.org/10.1080/00150190601018002>
- [13] Nguyễn Thị Hương Giang, Công thức xấp xỉ xác định hệ số dẫn nhiệt của vật liệu composite với cốt là vi cầu thủy tinh rỗng nền epoxy, *Tạp chí Giao thông Vận tải*, 63 (2022) 93-96.
- [14] Nguyễn Thị Hương Giang, Phương pháp số xác định hệ số dẫn ngang của vật liệu cốt sợi đồng phương, *Tạp chí Giao thông Vận tải*, 62 (2021) 26-28.
- [15] Z. Hashin, S. A. Shtrikman, Variational approach to the theory of the effective magnetic permeability of multiphase materials, *Journal of Applied Physics*, 33 (1962) 3125-3131. <https://doi.org/10.1063/1.1728579>
- [16] J. G. Berryman, Random close packing of hard spheres and disks, *Physical Review A*, 27 (1983) 1053. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.27.1053>