

11.1

Эффективная диэлектрическая проницаемость анизотропного композита из сфероидных частиц в диэлектрической матрице

© Б.А. Беляев^{1,2}, В.В. Тюрнев³, С.А. Ходенков¹¹ Сибирский государственный университет науки и технологий им. М.Ф. Решетнева, Красноярск, Россия² Сибирский федеральный университет, Красноярск, Россия³ Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН, Красноярск, Россия

E-mail: belyaev@iph.krasn.ru

Поступило в Редакцию 5 августа 2021 г.

В окончательной редакции 20 августа 2021 г.

Принято к публикации 20 августа 2021 г.

Получены концентрационные зависимости эффективной диэлектрической проницаемости анизотропного композита, содержащего в диэлектрической матрице сонаправленные частицы в форме сплюснутых или вытянутых эллипсоидов вращения — сфероидов. Расчет проведен численным решением системы связанных квадратных и интегральных уравнений, полученных в строгой модификации квазистатической теории Бруггемана. Показано, что традиционная (упрощенная) модификация теории Бруггемана, широко используемая для расчета анизотропных композитов, дает погрешности разных знаков для продольной и поперечной поляризации электромагнитных волн относительно оси сфероидов. При этом зависимости погрешностей от концентрации частиц носят немонотонный характер, а наблюдаемые на них экстремумы могут превышать 100%, причем положение и величина экстремумов сильно зависят от эллиптичности частиц, а также от контраста их диэлектрической проницаемости с диэлектрической проницаемостью матрицы.

Ключевые слова: композитный материал, сфероидные частицы, анизотропия, эффективная диэлектрическая проницаемость.

DOI: 10.21883/PJTF.2021.23.51779.18984

Материалы, состоящие из диэлектрической матрицы, наполняемой какими-либо частицами, привлекают внимание исследователей в связи с возможностью плавного изменения в них эффективной диэлектрической проницаемости, что очень важно, например, при конструировании многослойных полосно-пропускающих фильтров терагерцевого диапазона [1]. Квазистатический расчет эффективной диэлектрической проницаемости композитного материала, содержащего в диэлектрической матрице сферические частицы с заданной диэлектрической проницаемостью, был впервые предложен Максвеллом Гарнеттом [2]. Однако в этом расчете не учитывается электродипольное взаимодействие поляризованных частиц, поэтому с увеличением их концентрации точность расчета быстро падает. Так, при объемной концентрации наночастиц в композите всего лишь 0.1% относительная погрешность расчета мнимой компоненты его эффективной диэлектрической проницаемости превышает 100% [3].

Расчет эффективной диэлектрической проницаемости композитного материала, учитывающий электродипольное взаимодействие всех его поляризованных частиц, был выполнен Бруггеманом [4]. В этом расчете также рассматривались наночастицы сферической формы. Их взаимодействие учитывалось в приближении среднего поля. При этом считалось, что электрическое поле внутри частицы однородно, т.е. ее размер много меньше длины волны с учетом диэлектрической проницаемости материала самой частицы. Другими словами, в расче-

те использовалось квазистатическое приближение. Для композитного материала, содержащего два или несколько типов сферических частиц из изотропных материалов, эффективная диэлектрическая проницаемость ε^{eff} является решением уравнения [5]:

$$\sum_k c_k \frac{\varepsilon^{(k)} - \varepsilon^{eff}}{\varepsilon^{(k)} + 2\varepsilon^{eff}} = 0, \quad (1)$$

где суммирование проводится по индексу k , соответствующему типу частицы. Здесь c_k — относительная объемная концентрация частиц k -го типа в композитном материале, а $\varepsilon^{(k)}$ — диэлектрическая проницаемость материала частицы k -го типа.

Для расчета тензора эффективной диэлектрической проницаемости $\hat{\varepsilon}^{eff}$ анизотропного композитного материала, содержащего частицы эллипсоидальной формы с сонаправленными осями, были предложены две различные модификации расчета Бруггемана [6]. В обеих модификациях уравнение (1) преобразуется в уравнение [5–8]:

$$\sum_k c_k \frac{\varepsilon^{(k)} - \hat{\varepsilon}^{eff}}{\hat{\varepsilon}^{eff} + \hat{\mathbf{N}}^{(k)}(\varepsilon^{(k)} - \hat{\varepsilon}^{eff})} = 0, \quad (2)$$

где $\hat{\mathbf{N}}^{(k)}$ — тензор коэффициентов деполяризации частицы k -го типа, компоненты которого в случае сферической формы частиц равны 1/3.

В первой модификации расчета Бруггемана компоненты тензора деполяризации задаются формулой Полдера

и Сантена [9]:

$$N_{1,2,3}^{(k)} = \int_0^\infty \frac{a_1^{(k)} a_2^{(k)} a_3^{(k)} du}{2[(a_{1,2,3}^{(k)})^2 + u] \sqrt{[(a_1^{(k)})^2 + u][(a_2^{(k)})^2 + u][(a_3^{(k)})^2 + u]}}, \quad (3)$$

где $a_1^{(k)}, a_2^{(k)}, a_3^{(k)}$ — три полуоси эллипсоидальной наночастицы k -го типа. При выводе этой формулы предполагалось, что выделенная эллипсоидальная частица расположена в среде, содержащей такие же частицы, но эта среда считается изотропной. Поэтому из формулы (3) видно, что деполяризующие коэффициенты $N_{1,2,3}$ зависят только от соотношения длин полуосей эллипсоида и не зависят от свойств окружающей среды. Эта модификация расчета Бруггемана широко используется исследователями, поэтому ее называют традиционной [6].

Во второй модификации бруггемановского расчета, которую называют строгой [6], компоненты тензора деполяризации определяются формулой [6,8,10]:

$$N_{1,2,3}^{(k)} = \int_0^\infty \frac{b_1^{(k)} b_2^{(k)} b_3^{(k)} du}{2[(b_{1,2,3}^{(k)})^2 + u] \sqrt{[(b_1^{(k)})^2 + u][(b_2^{(k)})^2 + u][(b_3^{(k)})^2 + u]}}. \quad (4)$$

Здесь в отличие от формулы (3) учитываются анизотропные свойства композитной среды, окружающей выделенную эллипсоидальную частицу. Для этого вместо полуосей $a_1^{(k)}, a_2^{(k)}, a_3^{(k)}$ используются полуоси $b_1^{(k)}, b_2^{(k)}, b_3^{(k)}$ „приведенного“ эллипсоида, определяемые выражениями

$$b_{1,2,3}^{(k)} = a_{1,2,3}^{(k)} / \sqrt{\varepsilon_{1,2,3}^{eff}}. \quad (5)$$

Итак, различие двух модификаций расчета Бруггемана состоит в том, что в традиционной модификации компоненты тензора деполяризации $\hat{N}^{(k)}$ считаются константами, при этом их зависимость от параметров искомого тензора эффективной диэлектрической проницаемости композита $\hat{\varepsilon}^{eff}$ игнорируется, а в строгой модификации эта зависимость учтена. В результате строгий расчет тензора $\hat{\varepsilon}^{eff}$ (2) значительно усложняется. Вместо решения системы несвязанных квадратных уравнений требуется решать систему из связанных квадратных и интегральных уравнений, что возможно только численно итерационным методом, используемым в работе.

С учетом широкой популярности среди исследователей традиционной модификации бруггемановского расчета эффективной диэлектрической проницаемости анизотропного композита, очевидно, большой интерес представляет изучение поведения точности такого расчета в зависимости от формы и концентрации частиц. С этой целью рассмотрим композиты, состоящие для простоты

либо из вытянутых, либо из сплюснутых эллипсоидов вращения (сфероидов), размещенных сонаправленно в диэлектрической матрице. Пусть для определенности в нашем исследовании относительная диэлектрическая проницаемость матрицы $\varepsilon_m = 1$, а диэлектрическая проницаемость материала частиц-сфероидов ε_p варьируется от 1 до 100. В этом исследовании эллиптичность частиц изменялась в пределах 1–1000 и определялась для сплюснутых ξ_o и вытянутых ξ_e сфероидов с осью вращения вдоль z , как это показано на соответствующих вставках к рис. 1, a, b .

На рис. 1 представлены зависимости эффективных диэлектрических проницаемостей от объемной концентрации c_f частиц в композите со сплюснутыми (a) и вытянутыми (b) сфероидами, имеющими диэлектрическую проницаемость $\varepsilon_p = 100$, построенные при $\xi_o = \xi_e = 10$. Штриховые линии соответствуют строгому расчету, пунктирные — расчету с использованием традиционного подхода, сплошными линиями показаны зависимости для изотропного композита с частицами в форме сфер ($\xi_o = \xi_e = 1$). Очевидно, что для композита со сферами традиционный и строгий расчеты $\varepsilon^{eff}(c_f)$ совпадают. Важно отметить, что зависимости, построенные на рис. 1 для двух поляризаций электромагнитных волн, отвечают широкой полосе частот от статики до верхней условной границы, на частотах которой длина волны в материале частицы должна намного превышать ее размеры. Видно, что разность результатов строгого и традиционного расчетов $\Delta\varepsilon^{eff} = \varepsilon_r^{eff} - \varepsilon_t^{eff}$, являющаяся абсолютной погрешностью, имеет разные знаки при смене поляризации волны с E_x на E_z как для сплюснутых, так и для вытянутых сфероидов, однако модуль $\Delta\varepsilon^{eff}$ для вытянутых сфероидов значительно меньше. Как и следовало ожидать, при $c_f = 0$ или 100% эффективная диэлектрическая проницаемость совпадает с диэлектрической проницаемостью матрицы или материала, из которого изготовлены частицы.

На рис. 2 показаны концентрационные зависимости относительных погрешностей $\eta = \Delta\varepsilon^{eff} / \varepsilon_r^{eff}$ традиционного расчета эффективных диэлектрических проницаемостей композитов со сплюснутыми (a) и вытянутыми (b) эллипсоидами вращения, построенные для трех значений эллиптичности наночастиц: $\xi_o = \xi_e = 1.1$ (сплошные линии), 10 (штриховые линии) и 100 (пунктирные линии). Отметим некоторые особенности в поведении зависимостей $\eta(c_f)$. Во-первых, при определенных значениях c_{extr} на зависимостях наблюдаются хорошо выраженные экстремумы η_{extr} , причем для поляризации электромагнитной волны, при которой погрешность имеет отрицательные значения, экстремумы значительно ярче как для сплюснутых, так и для вытянутых сфероидов.

Во-вторых, концентрации частиц, соответствующие положению экстремумов, сильно зависят от их эллиптичности, однако, когда форма частиц приближается к сфере ($\xi_o = \xi_e \rightarrow 1$), все экстремумы перемещаются

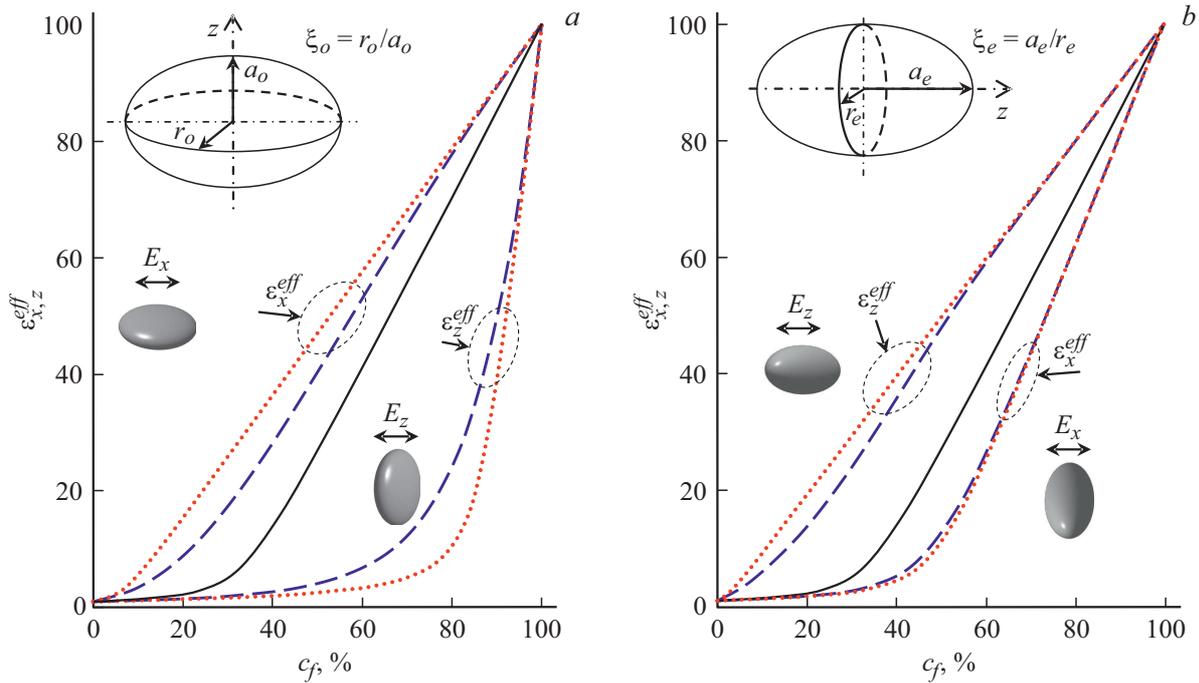


Рис. 1. Зависимости от концентрации частиц эффективных диэлектрических проницаемостей композитов со сплюснутыми (а) и вытянутыми (b) эллипсоидами вращения, построенные для $\xi_o = \xi_e = 10$. Штриховые линии — точный расчет, пунктирные линии — расчет с использованием традиционного подхода, сплошные линии — зависимости для изотропного композита со сферами ($\xi_o = \xi_e = 1$).

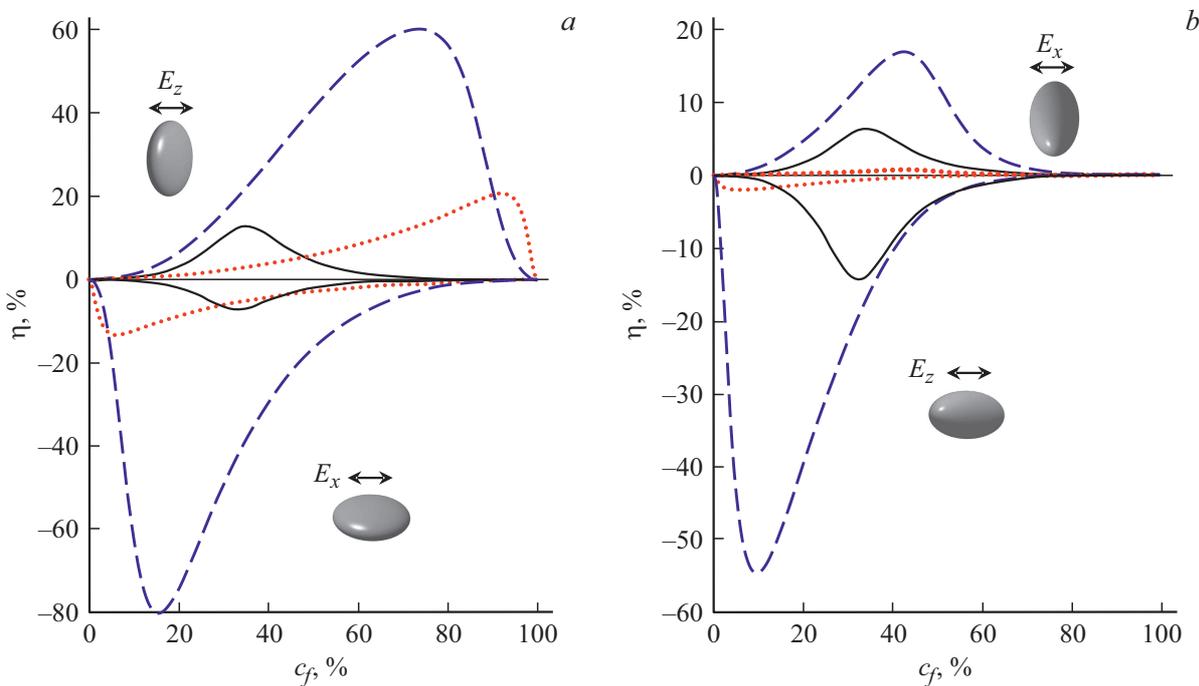


Рис. 2. Концентрационные зависимости относительных погрешностей традиционного расчета эффективных диэлектрических проницаемостей композитов со сплюснутыми (а) и вытянутыми (b) эллипсоидами вращения, построенные для $\xi_o = \xi_e = 1.1$ (сплошные линии), 10 (штриховые линии) и 100 (пунктирные линии).

в одну точку $c_{extr} \approx 33\%$, при этом они монотонно уменьшаются по величине. Отметим, что с увеличе-

нием эллиптичности сплюснутых сфероидов (рис. 2,а) экстремумы сдвигаются в область малых concentra-

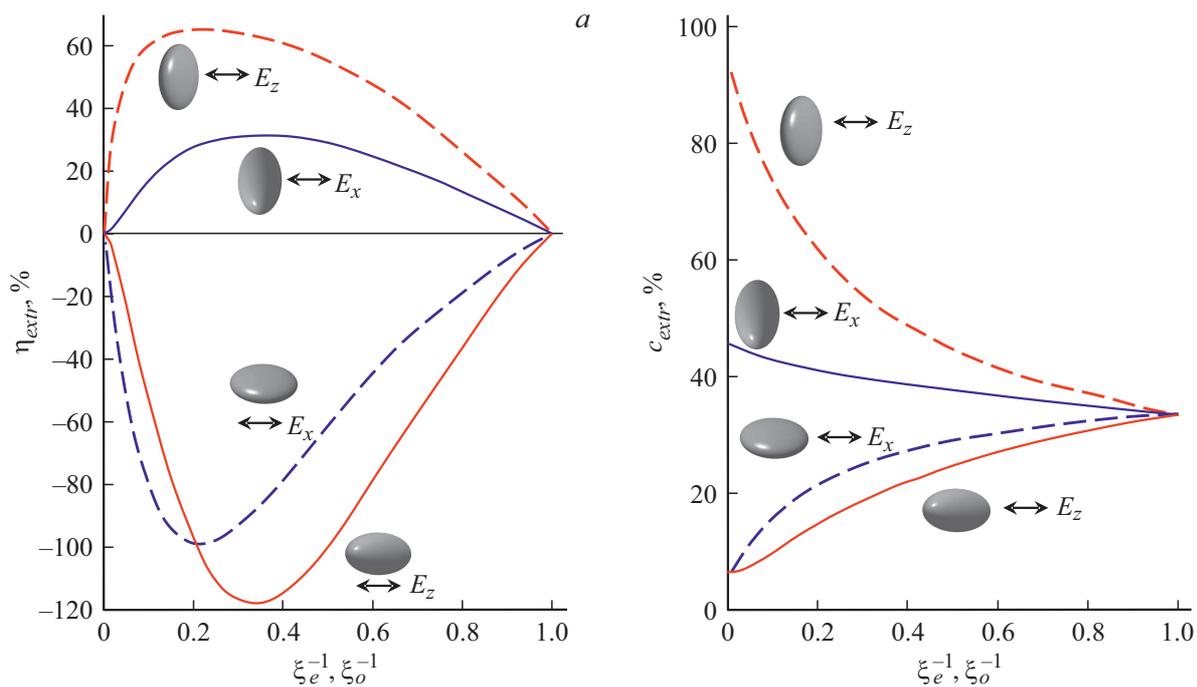


Рис. 3. Зависимости экстремальных значений относительных погрешностей традиционного расчета эффективных диэлектрических проницаемостей композита (*a*) и концентраций частиц в композите, при которых наблюдаются максимумы погрешностей (*b*), от обратных величин эллиптичности сплюснутых (штриховые линии) и вытянутых (сплошные линии) сфероидов.

ций при поляризации электромагнитной волны, когда электрическое поле направлено вдоль оси x (E_x), и в область больших концентраций, когда электрическое поле направлено вдоль оси z (E_z). Однако с увеличением эллиптичности вытянутых сфероидов (рис. 2, *b*), напротив, экстремумы сдвигаются в область малых концентраций, если электрическое поле волны направлено вдоль оси z (E_z), и в область больших концентраций, если электрическое поле направлено вдоль оси x (E_x).

И наконец, в-третьих, с увеличением эллиптичности частиц относительная погрешность традиционного расчета $\eta(c_f)$ сначала быстро растет, достигая в экстремумах несколько десятков процентов, а затем также стремительно падает. Важно отметить, что при эллиптичности частиц $\xi_o = \xi_e = 100$ погрешность расчета для сплюснутых сфероидов не превышает 20%, а для вытянутых сфероидов даже меньше 2%. Кроме того, только для вытянутых сфероидов погрешность расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита становится менее 10% при концентрации частиц более 50%.

На рис. 3, *a* представлены зависимости экстремальных значений относительных погрешностей традиционного расчета эффективных диэлектрических проницаемостей композита, а на рис. 3, *b* — аналогичные зависимости концентраций частиц в композите c_{ext} , при которых наблюдаются максимумы погрешностей. Для лучшей наглядности построены зависимости от обратных значений эллиптичности сплюснутых (штриховые линии) и вытянутых (сплошные линии) сфероидов, имеющих

диэлектрическую проницаемость $\varepsilon_p = 10$. Видно, что величины η_{ext} при определенных значениях эллиптичности частиц имеют экстремумы, в которых погрешность традиционного расчета для сплюснутых сфероидов более 60% при E_z -поляризации электромагнитной волны, а при E_x -поляризации эта погрешность достигает почти 100%. Для вытянутых сфероидов максимальная погрешность расчета для E_x -поляризации превышает 30%, а для E_z -поляризации достигает почти 120%. Отметим, что для каждой формы сфероида положение экстремумов погрешности традиционного расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита не зависит от поляризации волны. Для сплюснутых сфероидов экстремумы располагаются в точке $\xi_o^{-1} \approx 0.21$, а для вытянутых — в точке $\xi_e^{-1} \approx 0.33$. При уменьшении или увеличении эллиптичности сфероидов погрешность расчета монотонно уменьшается, а положения экстремумов этой погрешности смещаются, как это видно на рис. 3, *b*.

Таким образом, традиционная (упрощенная) модификация теории Бруггемана, широко используемая исследователями для расчета эффективной диэлектрической проницаемости ε^{eff} анизотропных композитов, может иметь относительную погрешность более 100%, как это показано, в частности, для композита, состоящего из сфероидов с относительной диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_p = 10$ в матрице с $\varepsilon_m = 1$. Однако при увеличении контраста относительной диэлектрической проницаемости материала сфероидов относительно материала матрицы композита погрешность традиционного расчета ε^{eff} существенно уменьшается, так же как и

с увеличением эллиптичности частиц. Последний факт допускает использование упрощенного расчета в тех случаях, когда в композите сплюснутые сфероиды становятся дисками, а вытянутые — стержнями. Очевидно, что при этом особенно ярко проявляются анизотропные свойства композита, которые очень важны при создании поляризаторов электромагнитных волн.

Отметим, что в рассмотренных анизотропных композитах матрица может иметь высокую относительную диэлектрическую проницаемость, а сфероиды — низкую. Например, для пористого материала с $\varepsilon_m = 100$ и $\varepsilon_p = 1$ зависимости, представленные на рис. 1, a, b , будут выглядеть перевернутыми снизу вверх. В результате при $c_f = 0$ эффективные диэлектрические проницаемости $\varepsilon_{x,z}^{eff} = 100$, а при $c_f = 100\%$ — $\varepsilon_{x,z}^{eff} = 1$. Отметим также, что для частот ниже терагерцевого диапазона наноразмерные частицы в композите могут быть значительно крупнее; главное, чтобы их размеры были много меньше длины волны с учетом диэлектрической проницаемости материала частицы на рабочей частоте.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (государственное задание FEFE-2020-0013).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Б.А. Беляев, Ан.А. Лексиков, В.В. Тюрнев, Д.А. Шабанов, ДАН, **497** (1), 5 (2021). DOI: 10.31857/S2686740021020024
- [2] J.C. Maxwell Garnett, Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A, **203** (359-371), 385 (1904).
- [3] Б.А. Беляев, В.В. Тюрнев, ЖЭТФ, **154** (4), 716 (2018). DOI: 10.1134/S0044451018100036
- [4] D.A.G. Bruggeman, Ann. Phys., **24** (5), 636 (1935).
- [5] T.C. Choy, *Effective medium theory: principles and applications* (Oxford Univ. Press, Oxford, 2016).
- [6] D. Schmidt, M. Schubert, J. Appl. Phys., **114** (8), 083510 (2013). DOI: 10.1063/1.4819240
- [7] G.M. Smith, Opt. Commun., **71** (5), 279 (1989).
- [8] T.G. Mackay, A. Lakhtakia, J. Nanophoton., **6** (1), 069501 (2012). DOI: 10.1117/1.JNP.6.069501
- [9] D. Polder, J.H. Van Santen, Physica, **12** (5), 257 (1946).
- [10] Л.А. Апресян, Д.В. Власов, ЖТФ, **84** (12), 23 (2014).