

РАСЧЕТ ЭФФЕКТИВНОЙ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОНИЦАЕМОСТИ КОМПОЗИТНОГО МАТЕРИАЛА, СОДЕРЖАЩЕГО НАПОЛНИТЕЛЬ С ОТРИЦАТЕЛЬНОЙ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОНИЦАЕМОСТЬЮ

В. В. Тюрнев*

Институт физики им. Л. В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук
660036, Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 29 марта 2024 г.,
после переработки 22 апреля 2024 г.
Принята к публикации 30 мая 2024 г.

Дано объяснение, почему уравнение Бруггемана непригодно для расчета эффективной диэлектрической проницаемости композитного материала, содержащего наполнитель с отрицательной диэлектрической проницаемостью. Получены формулы для расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита, содержащего сферические наночастицы наполнителя с отрицательной диэлектрической проницаемостью. Эти формулы могут быть использованы при получении композитных материалов с заданной диэлектрической проницаемостью, когда в композитах в качестве наполнителя используются наночастицы металла. Предсказано существование в указанных случаях немонотонной «резонансной» зависимости эффективной диэлектрической проницаемости от концентрации наночастиц наполнителя.

DOI: 10.31857/S0044451024110038

1. ВВЕДЕНИЕ

Одним из важных достоинств композитного материала является то, что, варьируя в его матрице величину объемной концентрации наночастиц наполнителя, можно изготавливать искусственный материал с заданным значением эффективной диэлектрической проницаемости. В частности, использование таких композитных материалов в многослойных полосно-пропускающих фильтрах, относящихся к частотно-селективным поверхностям микроволнового и оптического диапазонов, позволяет существенно уменьшить количество диэлектрических слоев в конструкции и благодаря этому значительно повысить их частотно-селективные свойства [1]. Это повышение выражается в расширении нижней и верхней полосы заграждения фильтра при фиксированной ширине полосы пропускания.

Для расчета эффективной диэлектрической проницаемости композитных материалов широко используется уравнение Бруггемана [2]. В случае изотропных композитов, содержащих сферические изо-

тропные частицы, это уравнение имеет вид

$$c_f \frac{\varepsilon^f - \varepsilon^e}{\varepsilon^f + 2\varepsilon^e} + (1 - c_f) \frac{\varepsilon^m - \varepsilon^e}{\varepsilon^m + 2\varepsilon^e} = 0, \quad (1)$$

где c_f — относительная объемная концентрация частиц наполнителя в матрице композитного материала, ε^m и ε^f — относительные диэлектрические проницаемости материала матрицы композита и материала его наполнителя соответственно, ε^e — относительная эффективная диэлектрическая проницаемость композитного материала. Это уравнение было получено в квазистатическом приближении, предполагающем, что размеры каждой частицы композитного материала малы по сравнению с длиной волны как в самой частице, так и в композитном материале. Дипольное взаимодействие между частицами композита учитывалось в приближении эффективного поля, описывающего воздействие на выделенную частицу со стороны других окружающих частиц. Такое приближение стали называть приближением эффективной среды [3] или теорией эффективной среды [4]. Решение уравнения (1) выражается формулой

$$\varepsilon^e = \frac{H + \sqrt{H^2 + 8\varepsilon^m \varepsilon^f}}{4}, \quad (2)$$

где

$$H = (2 - 3c_f)\varepsilon^m + (3c_f - 1)\varepsilon^f.$$

* E-mail: tyurnev@iph.krasn.ru

Обобщение уравнения (1) на случай, когда размеры сферических частиц соизмеримы с длиной волны в материале наполнителя, но остаются много меньше длины в композитном материале, проще всего осуществить, если в уравнении (1) провести замену [5]

$$\varepsilon^i \rightarrow \varepsilon^i J(k^i a), \quad (3)$$

где $k^i = \sqrt{\varepsilon^i \mu^i} \omega / c$ — волновое число для i -го материала ($i = m, f$), a — радиус частиц, а функция $J(x)$ задана формулой

$$J(x) = 2 \frac{1 - x \operatorname{ctg}(x)}{x^2 + x \operatorname{ctg}(x) - 1}. \quad (4)$$

Эта функция при $x = 0$ становится равной единице.

Обобщение уравнения (1) на случай анизотропных композитных материалов, содержащих сонаправленные эллипсоидальные частицы из изотропных материалов, записывают в виде системы уравнений [6–8]

$$\frac{c_f(\varepsilon^f - \varepsilon_j^e)}{\varepsilon_j^e + N_j(\varepsilon^f - \varepsilon_j^e)} + \frac{(1 - c_f)(\varepsilon^m - \varepsilon_j^e)}{\varepsilon_j^e + N_j(\varepsilon^m - \varepsilon_j^e)} = 0, \quad (5)$$

где ε_j^e — диагональные элементы тензора относительной эффективной диэлектрической проницаемости ϵ^e композитного материала, индекс j нумерует оси координат x, y, z , совпадающие с осями сонаправленных эллипсоидальных частиц, N_j — коэффициенты деполяризации эллипсоидальных частиц композита. Уравнения (5) выражают требование равенства нулю суммы электрических дипольных моментов \mathbf{p}^i всех частиц как матрицы, так и наполнителя, содержащихся в любом достаточно большом выделенном объеме композитного материала. Отметим, что составляющие комплексного вектора \mathbf{p}^i дипольного момента i -й частицы в анизотропной среде с тензором относительной диэлектрической проницаемости ϵ^e выражаются формулой [9]

$$p_j^i = V^i \frac{\varepsilon_j^e(\varepsilon^i - \varepsilon_j^e)}{\varepsilon_j^e + N_j(\varepsilon^i - \varepsilon_j^e)} \varepsilon_0 E_j^0, \quad (6)$$

где ε_0 — абсолютная диэлектрическая проницаемость свободного пространства, \mathbf{E}^0 — комплексная амплитуда электрического поля в анизотропной окружающей среде, V^i — объем, ε^i — относительная диэлектрическая проницаемость материала i -й частицы.

Далее гармонические электромагнитные колебания будем описывать множителем $\exp(-i\omega t)$. В этом случае мнимая часть любой из рассматриваемых диэлектрических проницаемостей не может принимать отрицательное значение.

Коэффициенты деполяризации N_j известны как элементы тензора деполяризации \mathbf{N} , которые описывают связь электрического поля \mathbf{E}^i внутри образца с полем \mathbf{E}^0 в окружающем образце пространстве. Когда образец имеет форму эллипсоида, а его оси направлены вдоль осей тензора ϵ^e , описывающего диэлектрические свойства окружающей среды, эта связь выражается формулой [9]

$$E_j^i = \frac{\varepsilon_j^e}{\varepsilon_j^e + N_j(\varepsilon^i - \varepsilon_j^e)} E_j^0, \quad (7)$$

где ε^i — относительная диэлектрическая проницаемость изотропного материала i -го образца. Для сферического образца в изотропной среде коэффициент деполяризации N_j не зависит от диэлектрических проницаемостей $\varepsilon^i, \varepsilon^e$ и принимает фиксированное значение для любого направления j . В этом случае формула (7) имеет простой вид [9]

$$\mathbf{E}^i = \frac{3\varepsilon^e}{2\varepsilon^e + \varepsilon^i} \mathbf{E}^0. \quad (8)$$

Математическое решение системы уравнений (5) можно записать в виде

$$\varepsilon_j^e = \frac{H_j \pm \sqrt{R_j}}{2(1 - N_j)}, \quad (9)$$

$$R_j = H_j^2 + 4N_j(1 - N_j)\varepsilon^m \varepsilon^f,$$

$$H_j = (1 - c_f - N_j)\varepsilon^m + (c_f - N_j)\varepsilon^f.$$

Как отмечено в [8], традиционно в уравнение (5) подставляют значения коэффициентов N_j , которые рассматривают как константы, не зависящие от ε_j^e и заданные интегралами

$$N_j = \int_0^\infty \frac{a_x a_y a_z ds}{2(s + a_j^2) \sqrt{(s + a_x^2)(s + a_y^2)(s + a_z^2)}}, \quad (10)$$

где a_x, a_y, a_z — полуоси эллипсоидальных частиц композита. Из этой формулы следует, что

$$N_x + N_y + N_z = 1. \quad (11)$$

Также видно, что коэффициенты N_j в формуле (10) зависят только от формы частиц, но не от их размеров и диэлектрических проницаемостей ε^m и ε^f . В частном случае, когда эллипсоид является сфероидом, т.е. $a_x = a_y \neq a_z$, формула (10) существенно упрощается и принимает вид [9]

$$N_z = \frac{1 + \kappa^2}{\kappa^3} (\kappa - \operatorname{arctg} \kappa),$$

$$N_x = N_y = \frac{1 - N_z}{2}, \quad (12)$$

$$\kappa = \sqrt{a_x^2 / a_z^2 - 1}.$$

Однако формула (12) была получена для сферического образца, расположенного только в изотропной среде [9]. Это значит, что ее использование для образцов в анизотропных средах неправомерно. Поэтому в [8] для коэффициентов деполяризации N_j предлагается использовать другую формулу, являющуюся строгой, но более сложной. Она совпадает с формулой (10), если в ней вместо полуосей a_x и a_z использовать полуоси приведенного сфероида [10]

$$a'_x = a_x / \sqrt{\varepsilon_x^e}, \quad a'_z = a_z / \sqrt{\varepsilon_z^e}. \quad (13)$$

Таким образом, коэффициенты деполяризации N_j в уравнениях (5) являются не константами, а функциями концентрации c_f . Их надо искать вместе с функциями $\varepsilon_j^e(c_f)$ совместным решением системы уравнений (9), (10) и (13). Заметим, что коэффициенты N_x и N_z , согласно формулам (12) и (13), могут принимать комплексные значения, когда отношение $\varepsilon_x^e / \varepsilon_z^e$ перестает быть вещественным. На эти факты было указано в работе [8]. Сравнение результатов расчета ε_j^e , выполненных с использованием как традиционной, так и строгой формулы для коэффициентов деполяризации N_j , проведено в работе [11].

Далее будем рассматривать случай композитного материала, изотропного по отношению к однородному электрическому полю \mathbf{E}^0 . Для определенности будем предполагать, что это поле направлено вдоль оси z . Поэтому эффективной диэлектрической проницаемостью композита ε^e будем называть диагональный элемент ε_z^e тензора ε^e , описывающего свойства среды по отношению к неоднородным локальным полям рассеяния частиц \mathbf{E}^s . Коэффициентом деполяризации N , отвечающим элементу ε_z^e , будем называть диагональный элемент N_z . Тогда уравнение для эффективной диэлектрической проницаемости ε^e , согласно формуле (9), принимает вид

$$\varepsilon^e = \frac{H \pm \sqrt{R}}{2(1-N)}, \quad (14)$$

$$H = (1 - c_f - N)\varepsilon^m + (c_f - N)\varepsilon^f,$$

$$R = H^2 + 4N(1-N)\varepsilon^m\varepsilon^f.$$

Эта двузначная формула при выборе в ней знака плюс и $N = 1/3$ совпадает с формулой (2).

2. НЕРЕШЕННАЯ ПРОБЛЕМА

Существенным недостатком уравнения Бруггемана (1) является то, что при отрицательных значениях ε^f существует область значений концентрации c_f , в которой эффективная диэлектрическая проницаемость ε^e , вычисляемая по формуле (2), при-

нимает комплексные значения даже при вещественных значениях ε^m и ε^f . Нижняя и верхняя границы этой области при вещественных ε^m и ε^f выражаются формулой

$$c_{1,2} = \frac{(\sqrt{2\varepsilon^m} \mp \sqrt{-\varepsilon^f})^2}{3(\varepsilon^m - \varepsilon^f)}. \quad (15)$$

Однако комплексное значение ε^e при отсутствии диэлектрических потерь недопустимо, так как оно говорит о неустойчивом состоянии композитного материала, выражающемся в изменении амплитуды плоской электромагнитной волны по мере ее распространения. На этот недостаток уравнения (1) было указано в работе [12].

Другой недостаток заключается в том, что при $2\varepsilon^m + \varepsilon^f < 0$ формула (2) в точке $c_f = 0$ вместо значения $\varepsilon^e = \varepsilon^m$ выдает значение $\varepsilon^e = -\varepsilon^f/2$, а при $\varepsilon^m + 2\varepsilon^f < 0$ в точке $c_f = 1$ вместо значения $\varepsilon^e = \varepsilon^f$ выдает значение $\varepsilon^e = -\varepsilon^m/2$. Однако этот недостаток легко устраняется, если в формуле (2) выбрать противоположный знак перед знаком квадратного корня, т. е. выбрать другой корень квадратного уравнения (1).

В оптическом диапазоне отрицательной диэлектрической проницаемостью обладают металлы [13,14].

Целью настоящей работы является расчет концентрационной зависимости эффективной диэлектрической проницаемости $\varepsilon^e(c_f)$ изотропного немагнитного композитного материала, содержащего наполнитель с отрицательной диэлектрической проницаемостью ε^f .

3. ПРИЧИНА ПРОБЛЕМЫ

Указанная проблема возникла в результате ошибочного предположения о том, что изотропная композитная среда всегда проявляет изотропные свойства не только по отношению к однородному поляризованному полю \mathbf{E}^0 , но и по отношению к порождаемым поляризованными частицами среды локализованным неоднородным полям рассеяния \mathbf{E}^s , которые имеют составляющие, ортогональные полю \mathbf{E}^0 .

В действительности же поляризованная композитная среда, являясь изотропной по отношению к однородному полю \mathbf{E}^0 , не может сохранить свои изотропные свойства по отношению к микронеподородным полям \mathbf{E}^s , если ε^m и ε^f имеют противоположные знаки. В противном случае, т. е. при изотропных коэффициентах деполяризации N_j , поляризованная композитная среда будет по отношению к полям \mathbf{E}^s находиться в неустойчивом состоянии, на что ука-

зывает появление мнимой части при вещественных значениях ε^m и ε^f , как было отмечено выше.

О зависимости структуры поля рассеяния частицы \mathbf{E}^s от анизотропных свойств окружающей среды, описываемых тензором $\boldsymbol{\varepsilon}^e$, можно судить по формулам

$$\begin{aligned} E_x^p &= \frac{\frac{2p_x x^2}{\varepsilon_x^e} + \frac{3p_y xy}{\varepsilon_y^e} + \frac{3p_z xz}{\varepsilon_z^e} - \frac{p_x y^2}{\varepsilon_y^e} - \frac{p_x z^2}{\varepsilon_z^e}}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon^e \sqrt{\varepsilon_x^e \varepsilon_y^e \varepsilon_z^e \left(\frac{x^2}{\varepsilon_x^e} + \frac{y^2}{\varepsilon_y^e} + \frac{z^2}{\varepsilon_z^e}\right)^{5/2}}}, \\ E_y^p &= \frac{\frac{2p_y y^2}{\varepsilon_y^e} + \frac{3p_z yz}{\varepsilon_z^e} + \frac{3p_x xy}{\varepsilon_x^e} - \frac{p_y z^2}{\varepsilon_z^e} - \frac{p_y x^2}{\varepsilon_x^e}}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon^e \sqrt{\varepsilon_x^e \varepsilon_y^e \varepsilon_z^e \left(\frac{x^2}{\varepsilon_x^e} + \frac{y^2}{\varepsilon_y^e} + \frac{z^2}{\varepsilon_z^e}\right)^{5/2}}}, \\ E_z^p &= \frac{\frac{2p_z z^2}{\varepsilon_z^e} + \frac{3p_x xz}{\varepsilon_x^e} + \frac{3p_y yz}{\varepsilon_y^e} - \frac{p_z x^2}{\varepsilon_x^e} - \frac{p_z y^2}{\varepsilon_y^e}}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon^e \sqrt{\varepsilon_x^e \varepsilon_y^e \varepsilon_z^e \left(\frac{x^2}{\varepsilon_x^e} + \frac{y^2}{\varepsilon_y^e} + \frac{z^2}{\varepsilon_z^e}\right)^{5/2}}}. \end{aligned} \quad (16)$$

Эти выражения следуют из формулы

$$\varphi^p = \frac{\varepsilon_y^e \varepsilon_z^e p_x x + \varepsilon_x^e \varepsilon_z^e p_y y + \varepsilon_x^e \varepsilon_y^e p_z z}{4\pi\varepsilon_0[\varepsilon_x^e \varepsilon_y^e \varepsilon_z^e (x^2/\varepsilon_x^e + y^2/\varepsilon_y^e + z^2/\varepsilon_z^e)]^{3/2}}, \quad (17)$$

которая описывает в квазистатическом приближении потенциал точечного дипольного момента \mathbf{p} в анизотропной среде. В свою очередь сама формула (17) получается из известной формулы [9]

$$\varphi^q = \frac{q}{4\pi\varepsilon_0 \sqrt{\varepsilon_x^e \varepsilon_y^e \varepsilon_z^e (x^2/\varepsilon_x^e + y^2/\varepsilon_y^e + z^2/\varepsilon_z^e)}} \quad (18)$$

для кулоновского потенциала точечного заряда q в анизотропной окружающей среде и известного соотношения [15]

$$\varphi^p = -\frac{\mathbf{p}}{q} \text{grad} \varphi^q, \quad (19)$$

выражающего потенциал φ^p точечного дипольного момента \mathbf{p} через кулоновский потенциал φ^q точечного заряда.

Таким образом, ошибка при расчете эффективной диэлектрической проницаемости изотропного композитного материала возникла в результате того, что в уравнении (14) не была учтена зависимость коэффициента деполяризации N от структуры поля \mathbf{E}^s , которая, в свою очередь, зависит от концентрации c_f . То есть коэффициенту деполяризации задавалось фиксированное значение $N = 1/3$, из-за чего корректная формула (14) превратилась в ошибочную формулу (2).

Поэтому цель настоящей работы сводится к расчету концентрационной зависимости коэффициента деполяризации $N(c_f)$, который используется в формуле (14) при расчете эффективной диэлектрической

ской проницаемости $\varepsilon^e(c_f)$ изотропного композитного материала, содержащего наполнитель с отрицательной диэлектрической проницаемостью ε^f .

4. РЕШЕНИЕ ЗАДАЧИ

Рассмотрим сначала случай, когда диэлектрические потери в изотропном композитном материале отсутствуют и поэтому диэлектрические проницаемости ε^m , ε^f и ε^e принимают вещественные значения. Этот случай интересен тем, что для него существует несколько точек значений концентрации c_f , в которых значения N и ε^e заранее известны.

Важнейшей из этих точек является точка концентрации c_f , в которой ε^e принимает нулевое значение. Существование «нулевой» точки в области $0 < c_f < 1$ следует из условия непрерывности вещественной функции $\varepsilon^e(c_f)$ и из ее граничных условий

$$\begin{aligned} \varepsilon^e(c_f)|_{c_f=0} &= \varepsilon^m > 0, \\ \varepsilon^e(c_f)|_{c_f=1} &= \varepsilon^f < 0. \end{aligned}$$

Одновременное же обращение в нуль функции $N(c_f)$ в «нулевой» точке следует из формул (12), (13). Из уравнения (5) находим значение c_f для «нулевой» точки:

$$c_f = \varepsilon^m / (\varepsilon^m - \varepsilon^f). \quad (20)$$

Замечаем, что в этой точке подкоренное выражение R , используемое в формуле (14), обращается в нуль.

Двумя другими важными значениями c_f являются граничные точки $c_f = 0$ и $c_f = 1$, в которых ε^e принимает значения ε^m и ε^f соответственно. Для нахождения значения N в таких точках можно воспользоваться формулой

$$N = \frac{c_f \varepsilon^e}{\varepsilon^e - \varepsilon^m} + \frac{(1 - c_f) \varepsilon^e}{\varepsilon^e - \varepsilon^f}, \quad (21)$$

которая получается из уравнения (5). Отсюда находим значения N :

$$\lim_{\substack{c_f \rightarrow 0 \\ \varepsilon^e \rightarrow \varepsilon^m}} N = \frac{\varepsilon^m}{\varepsilon^m - \varepsilon^f}, \quad \lim_{\substack{c_f \rightarrow 1 \\ \varepsilon^e \rightarrow \varepsilon^f}} N = \frac{\varepsilon^f}{\varepsilon^f - \varepsilon^m}. \quad (22)$$

Замечаем, что и в этих двух крайних точках, как и в «нулевой» точке, подкоренное выражение R обращается в нуль.

Обратимся еще к двум точкам c_1 и c_2 , заданным формулой (15). В этих точках, как мы уже знаем, вещественные решения частного уравнения (1), выражаемые формулой (2), совпадают с решениями (14) обобщенного уравнения (5) при $N = 1/3$. Это

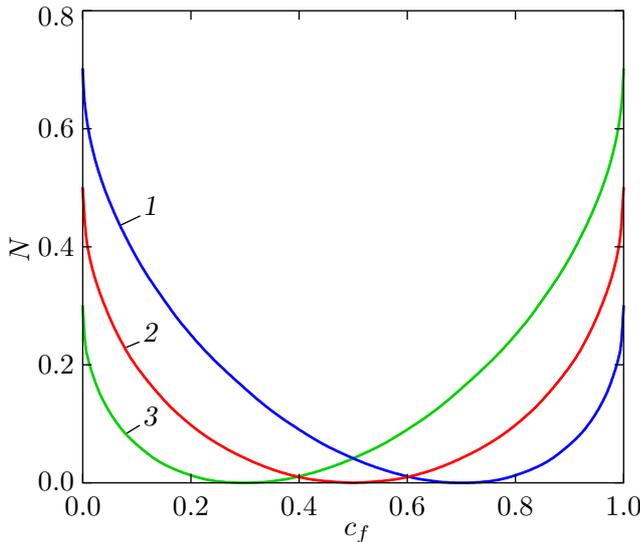


Рис. 1. Концентрационные зависимости коэффициента деполаризации частиц. 1 — $\epsilon^m = 7, \epsilon^f = -3$; 2 — $\epsilon^m = 5, \epsilon^f = -5$; 3 — $\epsilon^m = 3, \epsilon^f = -7$

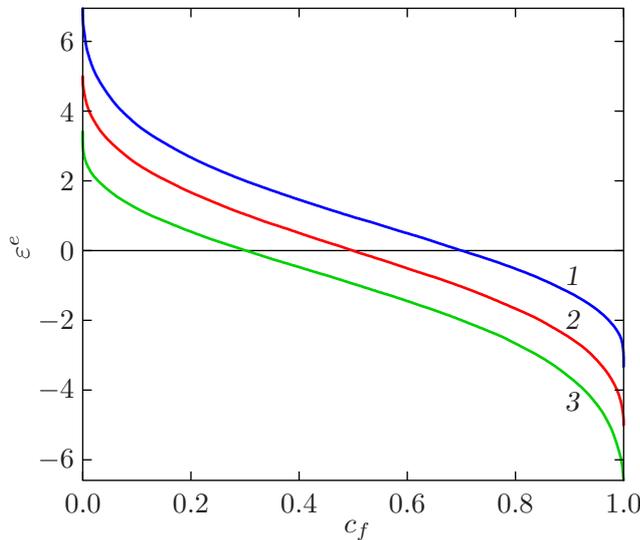


Рис. 2. Концентрационные зависимости эффективной диэлектрической проницаемости. 1 — $\epsilon^m = 7, \epsilon^f = -3$; 2 — $\epsilon^m = 5, \epsilon^f = -5$; 3 — $\epsilon^m = 3, \epsilon^f = -7$

значит, что подкоренное выражение R обращается в нуль и в этих двух точках значений c_f .

Таким образом, известные частные решения уравнения (14) для указанных выше пяти точек значения c_f могут служить критерием для проверки правильности искомого решения $\epsilon^e(c_f)$ во всей области значений c_f .

По самому определению эффективная диэлектрическая проницаемость $\epsilon^e(c_f)$ изотропной композитной среды является однозначной величиной, которая может принимать только одно-единственное значение. При этом его мнимая часть при наличии диэлектрических потерь должна быть только поло-

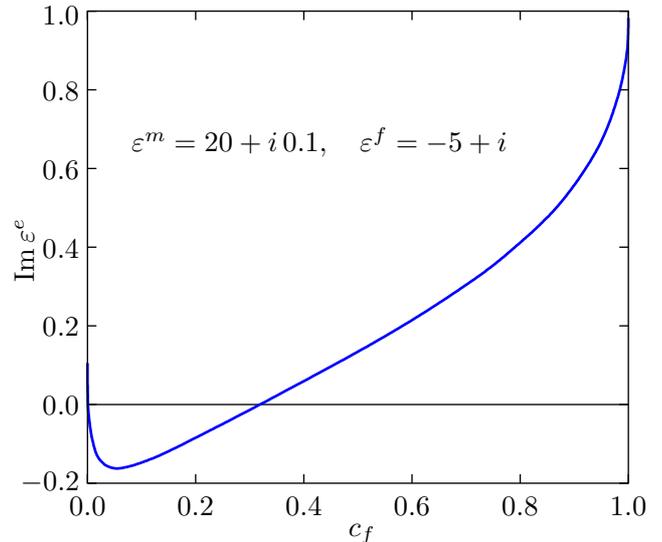


Рис. 3. Зависимость $\text{Im } \epsilon^e(c_f)$, рассчитанная по формулам (26) и (23) и подлежащая перерасчету по формулам (27) и (23)

жительной при любой концентрации c_f , а при отсутствии потерь должна равняться нулю. Из однозначности $\epsilon^e(c_f)$ следует, что в формуле (14) подкоренное выражение R должно равняться нулю. Отсюда для нахождения искомой зависимости $N(c_f)$ получаем недостающее уравнение:

$$\epsilon^e = \frac{(1 - c_f - N)\epsilon^m + (c_f - N)\epsilon^f}{2(1 - N)}. \quad (23)$$

Из самого же равенства $R = 0$ следует уравнение

$$[(1 - c_f - N)\epsilon^m + (c_f - N)\epsilon^f]^2 + 4N(1 - N)\epsilon^m\epsilon^f = 0. \quad (24)$$

Его решение выражается двучленной формулой:

$$N = \frac{[\sqrt{(1 - c_f)\epsilon^m} \pm \sqrt{-c_f\epsilon^f}]^2}{\epsilon^m - \epsilon^f}. \quad (25)$$

В отсутствие диэлектрических потерь, как мы уже отмечали, существует «нулевая» точка c_f , в которой $N(c_f)$ обращается в нуль. Поэтому формула (24) при отсутствии диэлектрических потерь принимает вид

$$N = \frac{[\sqrt{(1 - c_f)\epsilon^m} - \sqrt{-c_f\epsilon^f}]^2}{\epsilon^m - \epsilon^f}. \quad (26)$$

Зависимости $N(c_f)$ и $\epsilon^e(c_f)$, задаваемые формулами (26) и (23), иллюстрируют графики, представленные на рис. 1 и рис. 2 для трех наборов вещественных значений ϵ^m и ϵ^f .

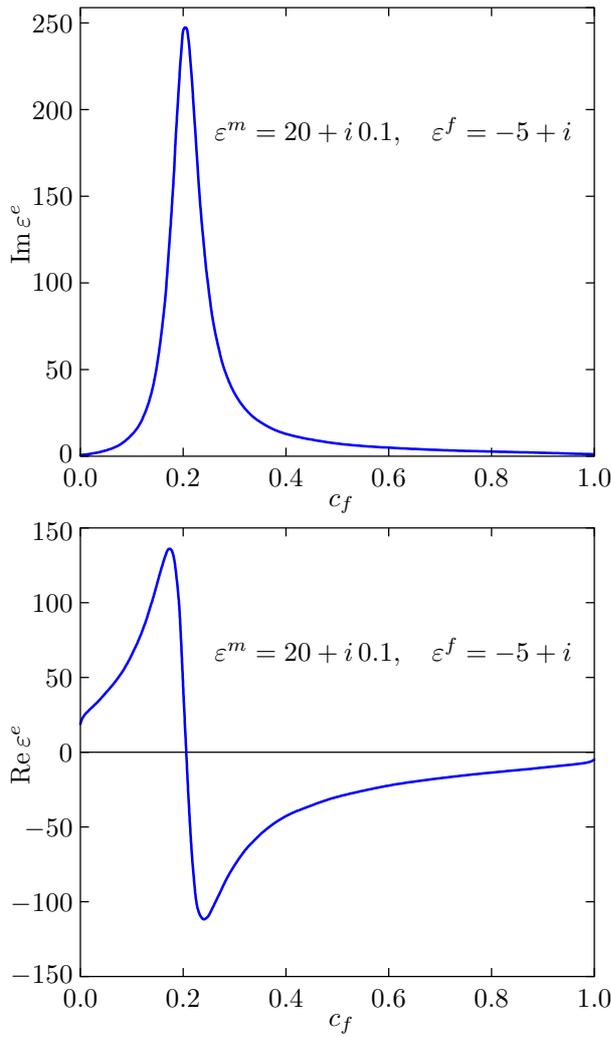


Рис. 4. Зависимости $\text{Im } \varepsilon^e(c_f)$ и $\text{Re } \varepsilon^e(c_f)$, рассчитанные по формулам (27) и (23)

Видно, что зависимости $N(c_f)$ описываются непрерывными гладкими функциями с одним минимумом на нулевом уровне. Зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ описываются непрерывными гладкими убывающими функциями, пересекающими нулевой уровень.

При наличии диэлектрических потерь из двух значений $N(c_f)$ в двузначной формуле (24) следует выбрать то значение, при котором мнимая часть $\varepsilon^e(c_f)$ не принимает отрицательное значение ни при каком значении концентрации c_f . Пример, когда мнимая часть функции $\varepsilon^e(c_f)$, рассчитанной по формуле (26), принимает отрицательное значение, показывает график на рис. 3.

В этом случае вместо формулы (26) следует использовать формулу

$$N = \frac{\left[\sqrt{(1 - c_f)\varepsilon^m} + \sqrt{-c_f\varepsilon^f} \right]^2}{\varepsilon^m - \varepsilon^f}. \quad (27)$$

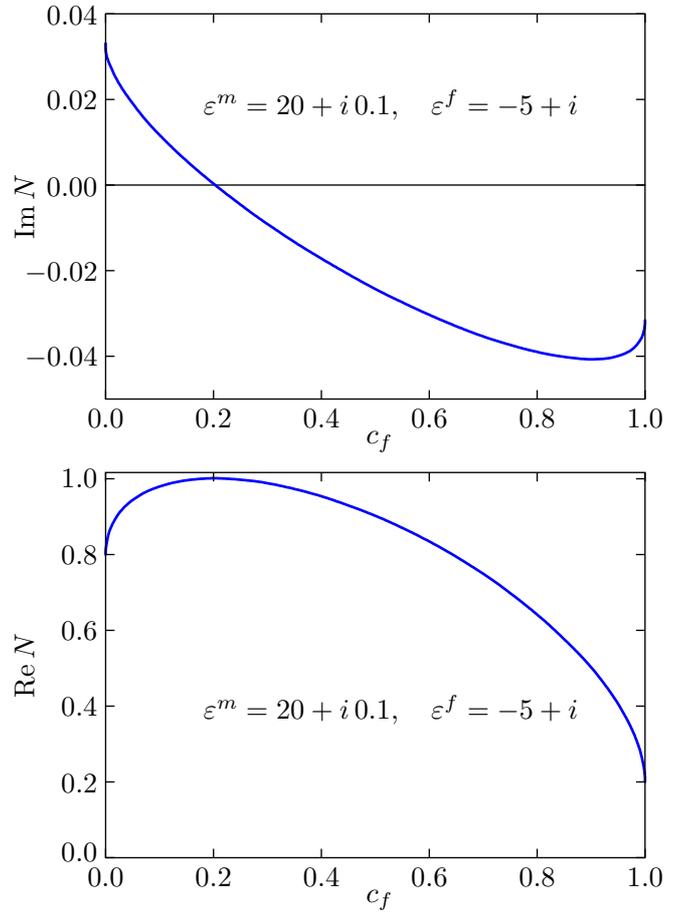


Рис. 5. Зависимости $\text{Im } N(c_f)$ и $\text{Re } N(c_f)$, рассчитанные по формуле (27)

Результат альтернативного расчета зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ по формулам (23) и (27), не допускающего возникновения области отрицательных значений $\text{Im } \varepsilon^e$ при тех же значениях параметров ε^m и ε^f , приведен на рис. 4. Соответствующая зависимость $N(c_f)$, рассчитанная по формуле (27), представлена на рис. 5.

Кривые концентрационных зависимостей на рис. 4 напоминают кривые частотного резонанса. Попробуем дать этому неожиданному явлению не строгое, но хотя бы упрощенное объяснение. Каждую наночастицу композита будем упрощенно рассматривать как реактивный двухполюсник. Для этого сначала запишем формулу для комплексной проводимости параллельного колебательного контура

$$Y_{par} = 1/R + i/(\omega L) - i\omega C_0\varepsilon \quad (28)$$

и формулу для комплексного сопротивления последовательного колебательного контура

$$Z_{ser} = R - i\omega L - i/(\omega C_0\varepsilon). \quad (29)$$

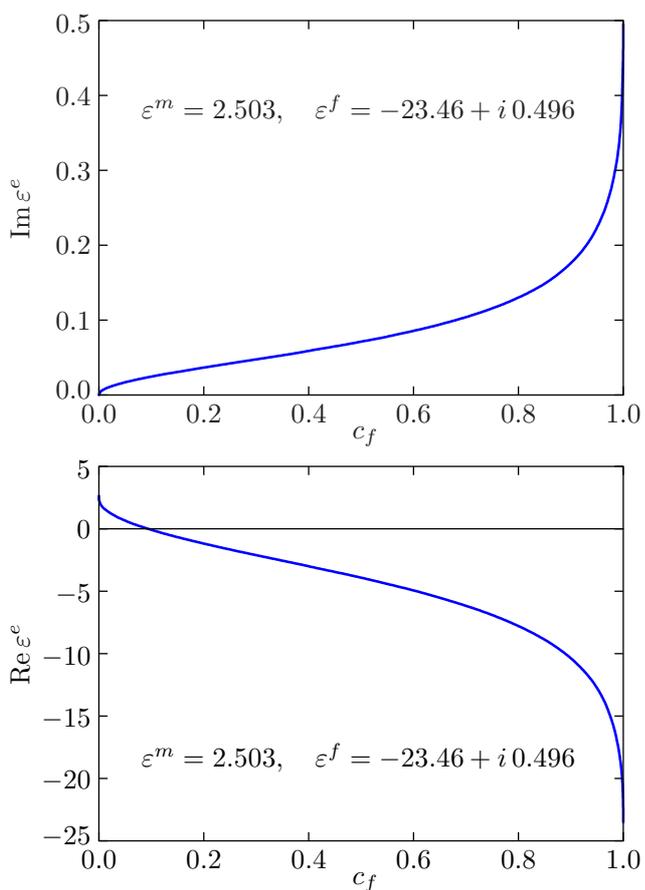


Рис. 6. Зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ на частоте 426 ТГц, рассчитанные по формулам (23) и (26)

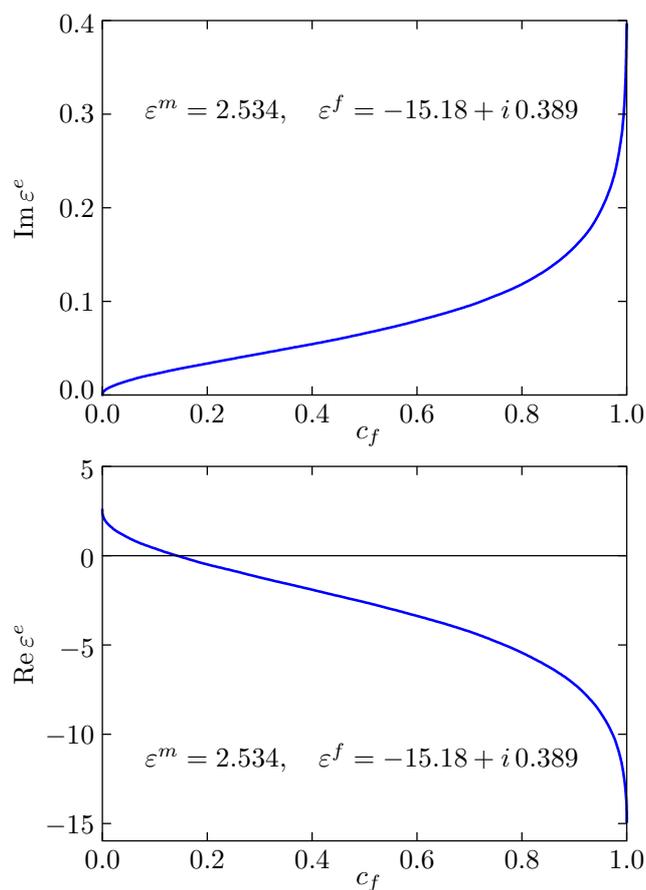


Рис. 7. Зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ на частоте 510 ТГц, рассчитанные по формулам (23) и (26)

Здесь ε — относительная диэлектрическая проницаемость материала, заполняющего конденсатор, а C_0 — емкость конденсатора при $\varepsilon = 1$.

Как из формулы (28), так и из формулы (29) видно, что при $\text{Re } \varepsilon < 0$ знак величины реактивной части сопротивления конденсатора совпадает со знаком величины реактивной части сопротивления индуктивности. Это значит, что наночастицы наполнителя композитного материала с отрицательной диэлектрической проницаемостью ε^f будут проявлять свойства только индуктивности.

В случае $\text{Re } \varepsilon > 0$ знак величины реактивной части сопротивления конденсатора противоположен знаку величины реактивной части сопротивления индуктивности. Поэтому наночастицы матрицы композита, имеющие положительную диэлектрическую проницаемость ε^m , могут проявлять как свойства емкости, так и свойства индуктивности, в зависимости от того, емкостное или индуктивное слагаемое реактивной части окажется больше.

В случае, когда наночастицы матрицы проявляют емкостные свойства, они вместе с наночастицами наполнителя, обладающими индуктивны-

ми свойствами, будут представлять собой систему, диэлектрические свойства которой «резонансным» образом зависят от концентрации наполнителя c_f . При «резонансной» концентрации вещественная часть эффективной диэлектрической проницаемости ε^e обращается в нуль, а мнимая часть принимает максимальное значение. Ниже «резонансной» концентрации композитный материал обладает эффективной диэлектрической проницаемостью ε^e , в которой вещественная часть положительна. Выше же «резонансной» концентрации вещественная часть отрицательна.

Отметим, что полученное решение, выражаемое формулами (26), (27), находится в полном согласии с заранее известными решениями задачи для пяти указанных точек c_f . Это решение также отвечает граничным условиям

$$\begin{aligned} \varepsilon^e(c_f)|_{c_f=0} &= \varepsilon^m, \\ \varepsilon^e(c_f)|_{c_f=1} &= \varepsilon^f. \end{aligned}$$

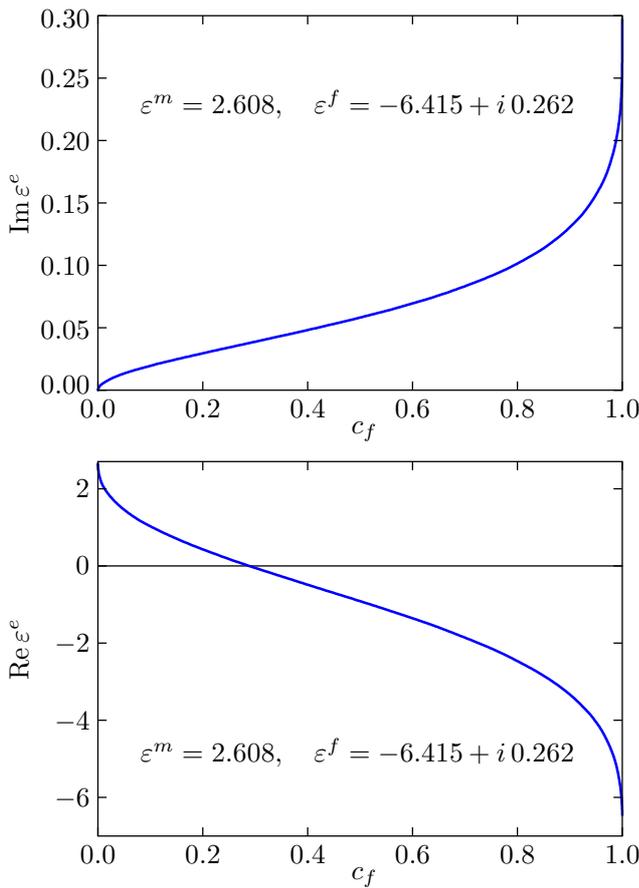


Рис. 8. Зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ на частоте 688 ТГц, рассчитанные по формулам (23) и (26)

5. ПРИМЕРЫ РАСЧЕТА ДЛЯ ПОЛИСТИРОЛА, НАПОЛНЕННОГО НАНОЧАСТИЦАМИ СЕРЕБРА

В качестве примера приведем результаты расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита, матрицей в котором является полистирол, а наполнителем — наночастицы серебра. Расчет будем выполнять по формулам (26), (27) и (23) на трех частотах видимого оптического диапазона и еще на одной частоте невидимого ультрафиолетового диапазона.

Первый расчет был выполнен для частоты 426 ТГц, относящейся к диапазону красного цвета. На этой частоте полистирол имеет диэлектрическую проницаемость $\varepsilon^m = 2.503$ [16], а серебро — $\varepsilon^f = -23.46 + i 0.495$ [14]. Результат расчета комплексной эффективной диэлектрической проницаемости композита представлен на рис. 6.

Второй расчет был выполнен для частоты 510 ТГц, относящейся к диапазону желтого цвета. На этой частоте полистирол имеет диэлектрическую проницаемость $\varepsilon^m = 2.534$ [16], а серебро —

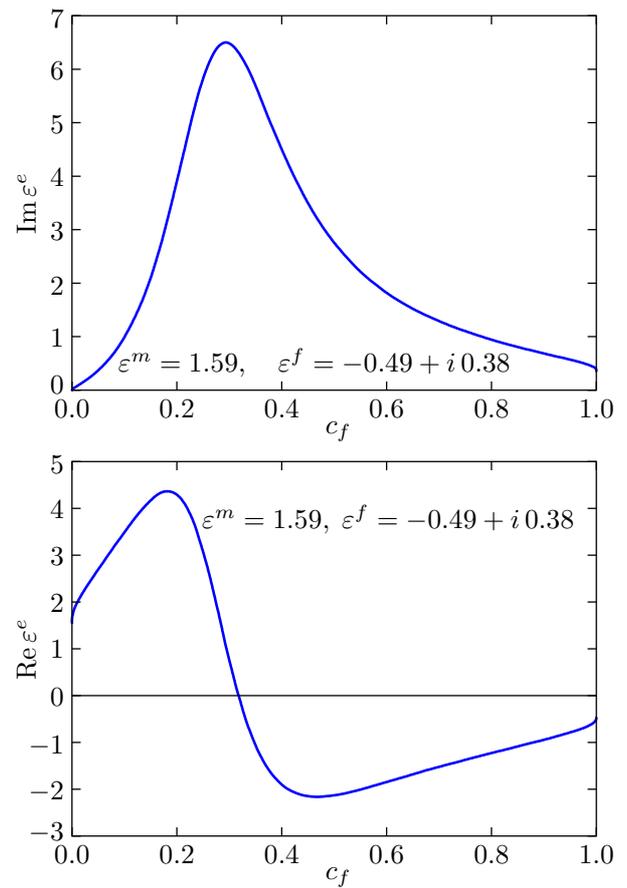


Рис. 9. Зависимости $\varepsilon^e(c_f)$ на частоте 914 ТГц, рассчитанные по формулам (23) и (27)

$\varepsilon^f = -15.18 + i 0.389$ [14]. Результат расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита представлен на рис. 7.

Третий расчет был выполнен для частоты 688 ТГц, относящейся к диапазону фиолетового цвета. На этой частоте полистирол имеет диэлектрическую проницаемость $\varepsilon^m = 2.608$ [16], а серебро — $\varepsilon^f = -6.415 + i 0.262$ [14]. Результат расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита представлен на рис. 8.

Четвертый расчет был выполнен для частоты 914 ТГц, относящейся к невидимому ультрафиолетовому диапазону. На этой частоте полистирол имеет диэлектрическую проницаемость $\varepsilon^m = 1.59$ [17], а серебро — $\varepsilon^f = -0.49 + i 0.38$ [14]. Результат расчета эффективной диэлектрической проницаемости композита представлен на рис. 9.

Представленные результаты расчета эффективной диэлектрической проницаемости композитного материала, матрицей которого является полистирол, а наполнителем наночастицы серебра, показывают, что во всем видимом оптическом

диапазоне частот концентрационные зависимости $\text{Re } \varepsilon^e(c_f)$ и $\text{Im } \varepsilon^e(c_f)$ являются непрерывными монотонными функциями. Только в ультрафиолетовом диапазоне частот концентрационная зависимость $\varepsilon^e(c_f)$ перестает быть монотонной и проявляет «резонансные» свойства.

6. ВЫВОДЫ

В работе показано, что причиной того, что уравнение Бруггемана (1) не позволяет выполнять расчет эффективной диэлектрической проницаемости $\varepsilon^e(c_f)$ изотропного композитного материала, содержащего сферические частицы наполнителя с отрицательной диэлектрической проницаемостью, является использование при его выводе ошибочного предположения о том, что коэффициент деполяризации N для любой его частицы в поляризованном композите всегда равен $1/3$.

В действительности же, коэффициент деполяризации N при отрицательном значении вещественной части диэлектрической проницаемости наполнителя ε^f является функцией объемной концентрации наполнителя c_f в матрице композита. Для расчета зависимости $N(c_f)$ была получена двузначная формула (24). В ней при заданных значениях параметров ε^m и ε^f следует из двух значений N исключить то значение, которое не обеспечивает устойчивое состояние композитного материала. Критерием неустойчивости состояния материала при наличии в нем диэлектрических потерь является отрицательная величина мнимой части $\text{Im } \varepsilon^e(c_f)$ хотя бы в какой-либо области значений c_f . В отсутствие же диэлектрических потерь в двузначной формуле (25) следует выбирать значение N , выражаемое однозначной формулой (26). Для расчета $\varepsilon^e(c_f)$, отвечающего выбранному значению $N(c_f)$, была получена формула (23).

Проведенные численные расчеты $\varepsilon^e(c_f)$ с использованием полученных формул показали, что зависимость $\varepsilon^e(c_f)$ не всегда бывает монотонной. Когда вещественная часть ε^m достаточно велика по сравнению с $|\varepsilon^f|$, зависимость $\varepsilon^e(c_f)$ напоминает кривую частотного резонанса.

Результаты работы могут быть полезны при разработке композитных материалов с заданным значением эффективной диэлектрической проницаемости для их использования в устройствах оптического диапазона.

Финансирование. Работа выполнена в рамках научной тематики Госзадания ИФ СО РАН.

ЛИТЕРАТУРА

1. Б. А. Беляев, Ан. А. Лексиков, В. В. Тюрнев и др., ДАН. Физика, техн. **497**, 5 (2021).
2. D. A. G. Bruggeman, Ann. der Phys. Ser. 5 **24**, 636 (1935).
3. D. J. Bergman and D. Stroud, Sol. St. Phys. **46**, 147 (1992).
4. T. C. Choy, *Effective Medium Theory*, Oxford (2016), Ch. 1.
5. Б. А. Беляев, В. В. Тюрнев, ЖЭТФ **154**, 716 (2018).
6. G. B. Smith, Opt. Commun. **71**, 279 (1989).
7. T. G. Mackay and A. Lakhtakia, J. Nanophoton. **6**, 069501 (2012).
8. D. Schmidt and M. Schubert, J. Appl. Phys. **114**, 083510 (2013).
9. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика*, т. 8, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982), §§ 8, 4, 13.
10. Л. А. Апресян, Д. В. Власов, ЖТФ **84**(12), 23 (2014).
11. Б. А. Беляев, В. В. Тюрнев, С. А. Ходенков, Письма в ЖТФ **47**(23), 22 (2021).
12. T. G. Mackay, J. Nanophoton. **1**, 019501 (2007).
13. P. V. Johnson and R. W. Christy, Phys. Rev. B **6**, 4370 (1972).
14. S. Babar and J. H. Weaver, Appl. Opt. **54**, 477 (2015).
15. Р. Фейнман, Р. Лейтон, М. Сэндс, *Фейнмановские лекции по физике*, вып. 5, *Электричество и магнетизм*, Мир, Москва (1977), гл. 6, § 4 (6.20) [R. P. Feynman, R. B. Leighton, and M. Sands, *The Feynman Lectures on Physics. Vol. II: Mainly Electromagnetism and Matter*, New York (2010), Ch. 6-4 (6.20)].
16. S. N. Kasarowa, N. G. Sultanova, C. D. Ivanov et al., Opt. Materials **29**, 1481 (2007).
17. S. B. Aziz, S. Hussein, A. M. Hussein et al., Int. J. Metals **2013**, Article ID 123657, <http://dx.doi.org/10.1155/2013/123657>.