

УДК 539.2

## ОСОБЕННОСТИ РАСПРОСТРАНЕНИЯ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ВОЛН В ПРОСТРАНСТВЕННО НЕОДНОРОДНЫХ СРЕДАХ

Д. ф.-м. н. М. И. Самойлович<sup>1</sup>, д. т. н. А. Ф. Белянин<sup>1</sup>, Dr. Sc. В. Бовтун<sup>3</sup>,  
д. т. н. А. С. Багдасарян<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Центральный научно-исследовательский технологический институт «Техномаш»,  
<sup>2</sup>Институт радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова РАН, г. Москва, Россия;  
<sup>3</sup>Институт физики АН ЧР, г. Прага, Чешская Республика  
samoylovich@technomash.ru

*Рассмотрены особенности измерения диэлектрической проницаемости и распространение электромагнитных волн в пространственно неоднородных средах.*

*Ключевые слова: метаматериалы, тонкие пленки, диэлектрическая проницаемость.*

Понятие диэлектрической проницаемости вводится для описания поляризации (электронного, ионного или ориентационного происхождения), а также релаксационных процессов в диэлектриках, что в предположении линейной зависимости между диэлектрической индукцией  $D$  и приложенным электрическим полем  $E$  сводится к пропорциональности  $D=\varepsilon E$ , где  $\varepsilon$  — диэлектрическая проницаемость (в общем случае для анизотропных сред  $D_i=\varepsilon_{ij}E_j$ ). Обычно имеем  $D=\varepsilon E$ ,  $D=E+4\pi P$ , где  $P$  — электрическая поляризация среды, которая определяет объемную и поверхностную плотность зарядов  $P=\xi E$ , где  $\xi$  — диэлектрическая восприимчивость. Макроскопический подход подразумевает возможность введения понятия средней плотности зарядов ( $\rho$  — при усреднении по объему, много большему размеров неоднородностей) и тогда  $\operatorname{div}D=0$  либо, при наличии в системе «сторонних» зарядов ( $\rho_{\text{ст}}$ ),  $\operatorname{div}D=\rho_{\text{ст}}$  [1]. Необходимым условием такого подхода является требование непрерывности (точнее, кусочно-непрерывности в масштабах, значительно больших межатомных расстояний) всех указанных функций, что реализуется в пространственно однородных системах, например в кристаллах, и не всегда имеет место в таких материалах, как наноккомпозиты, тонкие пленки или метаматериалы, составленные из материалов с пространственно отличающимися значениями  $\varepsilon=\varepsilon(r)$ . В противном случае можно ввести некоторую эффективную диэлектрическую проницаемость  $\varepsilon_{\text{эфф}}$ , которая будет характеризовать зависимость между усредненными значениями  $D$  и  $E$ . Интегрирование кусочно-непрерывных функций связано с интегрированием отдельных их кусков, так что однозначный результат возможен только при определенных условиях, связанных, в частности, с наличием конечного числа точек разрыва. Еще сложнее ситуация при интегрировании фрактальных систем, когда, например, при интегрировании экспоненциальных функций, получаются решения с нелинейным множителем или неоднозначной постоянной.

Кроме того, в средах, обладающих проводимостью ( $\sigma$ ) в нестационарных условиях (в частности, на переменном токе), необходимо не только накладывать дополнительные условия на  $D$ , связанные с величиной  $\sigma$ , но и учитывать вклад релаксационных процессов в эффективные значения  $\varepsilon_{\text{эфф}}$ , которые являются комплексными величинами  $\varepsilon=\varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega)$ . Собственно уравнение для потенциала  $\operatorname{div}(\varepsilon\nabla\varphi)=0$  переходит в обычное уравнение  $\nabla\varphi=0$  только в однородной диэлектрической среде. В неоднородной среде значения  $D$  могут отличаться от нуля и при  $E=0$ , определяясь градиентами термодинамических величин, изменяющихся в среде, и если обычно предполагается, что они невелики и не играют роли в изучаемых явлениях, в рассматриваемых ниже наносистемах, такое предположение может и не реализовываться. Таким образом, диэлектрическая проницаемость является кинетической материальной постоянной, которая для не зависящих от времени процессов является функцией термодинамического состояния системы [1]. Классики предполагали [1], что в определенных случаях под  $\varepsilon$  необходимо понимать функцию, получаемую в результате решения формальной задачи о поведении материала в некотором фиктивном однородном электрическом поле, а не в неизбежно пространственно неоднородном поле электромагнитной волны.

**Пространственная неоднородность нанокompозитов на основе опаловых матриц**

Решетчатые упаковки наносфер  $\text{SiO}_2$  (центры сфер образуют решетку), получившие название опаловых матриц, являются эффективной матрицей со структурой опала для получения различных 3D-нанокompозитов и метаматериалов. Наличие регулярной подрешетки нанополостей позволяет вводить в них различными методами необходимые вещества. Для изучения подобных диэлектрических сред были проведены исследования их структурных особенностей, а также реальной и мнимой компонент диэлектрической проницаемости в широком диапазоне частот и температур для опаловых матриц с введением в межсферические нанополости различных веществ, в частности титаната бария, с размерами кластеров 25—50 нм (рис. 1). Измерения компонент диэлектрической проницаемости в диапазоне низких частот ( $10^{-2}$ — $10^6$  Гц) были проведены с использованием диэлектрического анализатора *Novocontrol Alpha AN*, а на более высоких частотах ( $1 \cdot 10^6$ — $1,8 \cdot 10^9$  Гц) — диэлектрического спектрометра с коаксиальной измерительной ячейкой *Novocontrol BDS 2100* и анализатором импеданса *Agilent 4291B*. В микроволновой области ( $2 \cdot 10^8$ — $2 \cdot 10^{10}$  Гц) измерения проводились методом коаксиального зонда с открытым концом (сетевой анализатор *Agilent E8364B*), а в области ТГц — методом трансмиссионной ТГц-спектроскопии (фемтосекундная Ti-сапфировая лазерная система). Коаксиальные измерения ( $1 \cdot 10^6$ — $1,8 \cdot 10^9$  Гц) проводились на образцах в форме цилиндров (диаметр 3 мм, высота 4—5 мм), все остальные измерения проведены на образцах в форме пластин размерами  $10 \times 10$  мм и толщиной 1—3 мм.

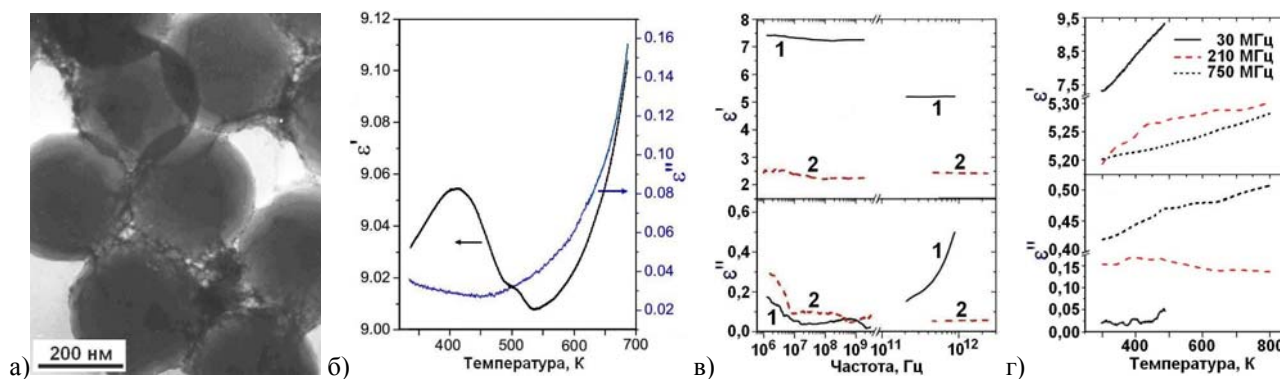


Рис. 1. Результаты исследования опаловой матрицы с заполнением межсферических нанополостей кластерами  $\text{BaTiO}_3$ :

- а) электронно-микроскопический снимок на просвет (микроскоп *JEM 200C*); б) температурные (на 100 кГц) зависимости действительной ( $\epsilon'$ ) и мнимой ( $\epsilon''$ ) составляющих диэлектрической проницаемости; в) частотные (1 МГц—3 ТГц) зависимости  $\epsilon'$  и  $\epsilon''$  (1) составляющих диэлектрической проницаемости (2 — опаловая матрица без заполнения); г) температурные зависимости составляющих диэлектрической проницаемости  $\epsilon'$  и  $\epsilon''$  в области высоких и ТГц частот

Температурные зависимости реальной и мнимой компонент диэлектрической проницаемости на низких частотах (рис. 1, б) позволили идентифицировать наличие стандартного сегнетоэлектрического фазового перехода для  $\text{BaTiO}_3$  около 400 К с ожидаемо размытым максимумом  $\epsilon'(T)$ . Частотные измерения обнаружили сильную диэлектрическую дисперсию ниже 1 кГц, наличие релаксационного максимума  $\tan\delta$  и гигантские значения компонент диэлектрической проницаемости на инфранизких частотах. Такая дисперсия, вероятно, обусловлена накоплением и релаксацией зарядов на границах «образец — электрод» и «опаловая матрица —  $\text{BaTiO}_3$ ». Последняя экранирует вклад фундаментальных механизмов поляризации, поэтому слабая аномалия в области фазового перехода  $\text{BaTiO}_3$  (рис. 1, б) заметна только выше 100 кГц. Фундаментальные механизмы поляризации (фононный и оптический) преобладают на высоких частотах (рис. 1, в, г). В диапазоне 1 МГц — 1 ТГц отсутствует существенная дисперсия  $\epsilon'(\omega)$ , диэлектрическая проницаемость незаполненной опаловой матрицы имеет значения  $\epsilon'=2,5$ —3, а матрицы с заполнением межсферических нанополостей кластерами  $\text{BaTiO}_3$  —  $\epsilon' = 5$ —10. Отсутствие дисперсии  $\epsilon'(\omega)$  соответствует низким диэлектрическим потерям в области микроволн, которые возрастают только в ТГц-области за счет близости мягкой сегнетоэлектрической моды  $\text{BaTiO}_3$ . Температурные зависимости  $\epsilon'$  в микроволновом и ТГц-диапазонах определяются фундаментальными механизмами поляризации: фононным с незначительным увеличе-

нием  $\epsilon'$  с ростом температуры и оптическим (электронным) с незначительным уменьшением  $\epsilon'$  с температурой как для опаловой матрицы, так и для подрешетки включения  $\text{BaTiO}_3$ . Вклад фоннного механизма в температурные зависимости преобладает (рис. 1, г).

### Пространственная неоднородность тонких пленок

В качестве примера пространственно неоднородной диэлектрической среды были также выбраны тонкие пленки. Во всех случаях, как было ранее показано [2], в тонких пленках имеет место образование как полностью, так и частично рентгеноаморфных структур, как результат формирования в условиях потери морфологической устойчивости [3] плоских поверхностей (гранных форм роста). В последнем случае с той или иной степенью текстурированности образуются поликристаллические (поликластерные) системы, когда проявляются морфологические иерархии в виде доменной, пластинчатости, волокнистости и другие виды пространственной неоднородности, что сопровождается «перекачкой» упругой объемной энергии в межфазную энергию [4]. Например, имеет место образование кристаллитов — нанокластеров распыляемой фазы, чьи области когерентного рассеивания, как правило, не превышают единиц или десятков (реже сотен) нм. Кристаллит для тонких пленок — нанокластер распыляемой фазы, характеризующийся областью когерентного рассеивания с размерами, как правило, менее 0,1—1 мкм, который сохраняет кристаллический класс (точечную группу), характерный для кристаллов данной фазы, но из-за нарушения (при таких размерах) трансляционной эквивалентности не может быть адекватно описан как кристаллическая фаза с соответствующей федоровской группой [5]. Действительно, по мере уменьшения размеров областей когерентного рассеивания (формального размера кластера), нарушения трансляционной эквивалентности нарастают, вплоть до полной ее потери в рентгеноаморфных пленках.

На рис. 2, 3 представлены результаты исследований пленок методом растровой электронной микроскопии (РЭМ), микроскоп *CARL ZEISS LEO 1430 VP*. Изученные пленки в функциональном смысле могут рассматриваться как наноструктурированные системы, в частности как составные композиты, в которых промежутки между кристаллитами могут быть заполнены рентгеноаморфной фазой, которая в ряде случаев представляет собой, по крайней мере, частично некристаллическую алмазоподобную структуру.

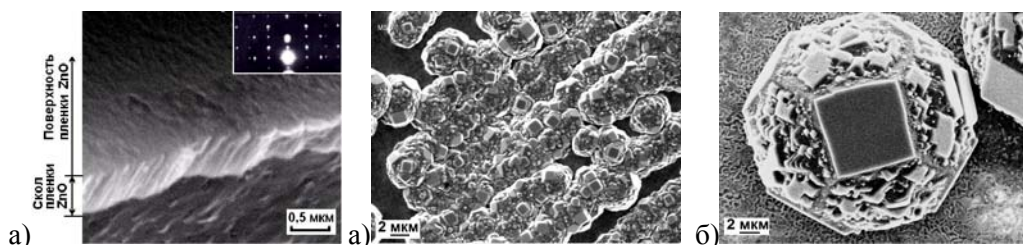


Рис. 2. Строение (РЭМ) пленки  $\text{ZnO}$  (а; на вставке — электронограмма на отражение) и фрагментов, зарождающейся наноструктурированной пленки алмаза, полученной на слоистых подложках из  $\text{SrTiO}_3/\text{Ir}\{100\}$  (б, в)

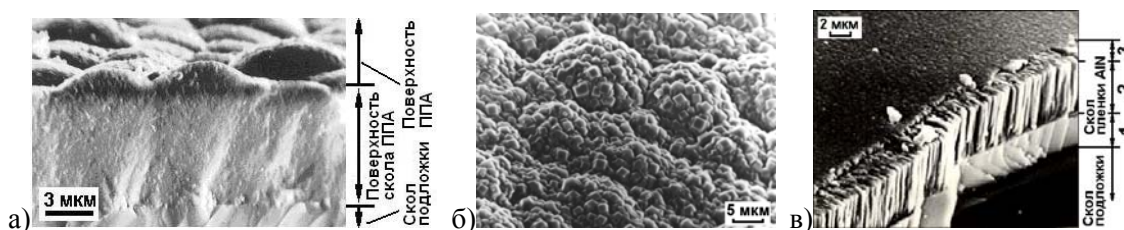


Рис. 3. Строение (РЭМ) поперечного скола (а) и поверхности (б) поликластерной пленки алмаза (ППА) на стадии образования граней  $\{100\}$  на глобулах, а также пленки  $\text{AlN}$  (в; переход пластинчатого строения (область 1) в волокнистое (область 2) и мелкозернистое с равноосными зернами (область 3))

«Движущей силой» подобного процесса упаковки является снижение интегральной энергии системы при уменьшении площади «свободных» псевдограней за счет межфазного взаимодействия при сохранении общего объема, при этом, как известно, может иметь место перекачка объемной упругой составляющей неизбежно возникающих напряжений в межфазную составляющую кристалли-

тов. Что касается рассматриваемых пленочных систем на основе металлов, можно полагать, что подобные структуры могут относиться к фрактальным, которые, в отличие от периодически упорядоченных твердотельных систем, связаны не столько с общими топологическими характеристиками, сколько с метрикой или, точнее, со способом построения системы, так что сама фрактальность структуры и характеризующая ее размерность являются основными свойствами такой системы.

Измерения  $\epsilon$  в пересчете из значения модуля прохождения электромагнитных волн для пленок AlN или поликластерных пленок алмаза дают (для МГц области частот) значения в области 10—12, тогда как измерения с использованием электродов приводят к гигантским значениям для  $\epsilon'$ , когда, фактически, во многих случаях измеряются емкостные характеристики контакта. Еще сложнее ситуация с измерениями пленок характеризующихся наличием проводимости на переменном токе в области низких и инфранизких частот (при отсутствии проводимости на постоянном токе) — во всех случаях получаемые значения зависят от области частот и способа измерения.

### Заключение

В настоящей работе проведен анализ понятия эффективной диэлектрической проницаемости для высокочастотных процессов в пространственно неоднородных средах. Сама эффективная проницаемость рассматривается для процессов с длиной волны, существенно превышающей масштаб пространственной неоднородности среды. Для получения метаматериала необходимо обеспечить определенные соотношения между значениями вещественной и мнимой составляющих диэлектрической проницаемости. Однако наличие в таких средах пространственной неоднородности не только усложняет стандартные методики измерений компонент диэлектрической проницаемости, но и приводит к нетривиальным корреляциям (соотношениям) между их локальными характеристиками (в наноразмерном масштабе) и интегральными свойствами таких систем. Получаемые без учета рассматриваемых эффектов значения  $\epsilon$  в лучшем случае соотносятся с особенностями пространственной неоднородности изучаемой среды, а в худшем — с методическими особенностями измерений. Как механизмы релаксации, вызванные пространственной неоднородностью структуры, так и изменения проводимости с температурой вносят существенный вклад в изменение  $\epsilon'$ , определяя дисперсию диэлектрической проницаемости.

Для эффективного применения исследованных материалов должна быть решена актуальная задача — добиться аномальных электромагнитных свойств в условиях малого поглощения. Для решения подобной задачи требуется не только измерение диэлектрических свойств, но и сведения о частотной и температурной дисперсии таких свойств. Необходимы сведения о структурном состоянии и условиях локальной симметрии кристаллических компонент в метаматериалах или кристаллитов в тонких пленках. Решение поставленных вопросов позволит определить условия существования аномальных электромагнитных свойств нанокомпозитов и метаматериалов, таких как влияние пространственной дисперсии или отрицательный знак показателя преломления, а, тем самым, определить области эффективного использования указанного класса материалов.

### ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ИСТОЧНИКИ

1. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Электродинамика сплошных сред.— М.: Наука.— 1964.— 531 с.
2. Белянин А. Ф., Самойлович М. И. Наноматериалы. IV. Тонкие пленки как наноструктурированные системы.— М.: Техномаш.— 2008.— 254 с.
3. Чернов А. А. Теория устойчивости гранных форм роста кристаллов // Кристаллография.— 1971.— Т. 16.— Вып. 4.— С. 842—863.
4. Ройтбурд А. Л. Особенности развития фазовых превращений в кристаллах // Проблемы современной кристаллографии.— М.: Наука.— 1975.— С. 245—369.
5. Mackay A. L. Generalized crystallography // Izvj. Jugosl. centr. krist.— 1975.— V. 10.— P. 15—36.

---

M. I. Samoylovich, A. F. Belyanin, V. Bovtun, A. S. Bagdasaryan

### **Propagation characteristics of electromagnetic waves in spatially inhomogeneous medium.**

The paper considers dielectric response measuring characteristics and propagation of electromagnetic waves in spatially inhomogeneous media.

Keywords: *meta-materials, thin films, dielectric response.*

---