

УДК 537.9

### ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА КОМПОЗИТНОЙ СРЕДЫ, ОБРАЗОВАННОЙ ЦЕПОЧКАМИ ТУННЕЛЬНО-СВЯЗАННЫХ УГЛЕРОДНЫХ НАНОТРУБОК

 $A. B. MЕЛЬНИКОВ^{1}, M. B. ШУБ<math>A^{1), 2}$ 

 $^{1)}$ Институт ядерных проблем БГУ, ул. Бобруйская, 11, 220006, г. Минск, Беларусь  $^{2)}$ Томский государственный университет, пр. Ленина, 36, 634050, г. Томск, Россия

При создании модели композитной среды на основе углеродных нанотрубок в гигагерцевом и субтерагерцевом диапазонах частот необходимо учитывать туннельную связь между наночастицами. Чтобы упростить рассмотрение, представлена модель композитной среды с включениями из одинаковых случайно ориентированных прямолинейных цепочек, состоящих из последовательно соединенных через туннельные контакты сонаправленных металлических однослойных углеродных нанотрубок. Задача рассеяния электромагнитного излучения на таких цепочках решалась путем применения метода интегральных уравнений классической электродинамики и формализма Ландауэра — Буттикера для квантового транспорта. Показано, что электронное туннелирование между нанотрубками ведет к электромагнитным размерным эффектам в цепочках конечной длины. При этом в гигагерцевом диапазоне частот имеет место режим, при котором сравнимые по величине действительная и мнимая части эффективной диэлектрической проницаемости композитной среды убывают с увеличением частоты, что нередко обнаруживается в экспериментах. Установлено, что размерные эффекты могут проявляться в пределах малых участков цепочки, ограниченных контактами низкой проводимости. Результаты работы дают понимание физических механизмов, ответственных за частотную дисперсию диэлектрической проницаемости композитных материалов на основе углеродных нанотрубок.

*Ключевые слова:* углеродная нанотрубка; композитная среда; туннельная связь; диэлектрическая проницаемость; гигагерцевый диапазон частот.

**Благодарность.** Исследование выполнено при поддержке Программы повышения конкурентоспособности Томского государственного университета.

#### Образец цитирования:

Мельников АВ, Шуба МВ. Электромагнитные свойства композитной среды, образованной цепочками туннельносвязанных углеродных нанотрубок. Журнал Белорусского государственного университета. Физика. 2021;2:61–70. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2021-2-61-70

#### For citation:

Melnikau AV, Shuba MV. Electromagnetic properties of a composite medium comprising chains of tunnel-coupled carbon nanotubes. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2021;2:61–70. Russian.

https://doi.org/10.33581/2520-2243-2021-2-61-70

#### Авторы:

**Александр Владимирович Мельников** – научный сотрудник лаборатории наноэлектромагнетизма.

**Михаил Владимирович Шуба** – доктор физико-математических наук; ведущий научный сотрудник лаборатории наноэлектромагнетизма<sup>1)</sup>, старший научный сотрудник лаборатории терагерцевых исследований<sup>2)</sup>.

#### Authors:

Aliaksandr V. Melnikau, researcher at the laboratory of nano-electromagnetics.

a lex and er. mel nikov. v@gmail.com

https://orcid.org/0000-0002-8202-0157

*Mikhail V. Shuba*, doctor of science (physics and mathematics); leading researcher at the laboratory of nanoelectromagnetics<sup>a</sup> and senior researcher at the laboratory of terahertz research<sup>b</sup>. *mikhail.shuba@gmail.com* 

https://orcid.org/0000-0003-4828-7242



61



# ELECTROMAGNETIC PROPERTIES OF A COMPOSITE MEDIUM COMPRISING CHAINS OF TUNNEL-COUPLED CARBON NANOTUBES

A. V. MELNIKAU<sup>a</sup>, M. V. SHUBA<sup>a, b</sup>

<sup>a</sup>Institute for Nuclear Problems, Belarusian State University, 11 Babrujskaja Street, Minsk 220006, Belarus <sup>b</sup>Tomsk State University, 36 Lenina Avenue, Tomsk 634050, Russia Corresponding author: A. V. Melnikau (alexander:melnikov.v@gmail.com)

When creating a model of a composite medium based on carbon nanotubes in the gigahertz and subterahertz ranges, it is necessary to take into account the tunnel coupling between nanoparticles. To simplify the consideration, we present a model of a composite medium consisting of the same randomly oriented linear chains of parallel single walled metallic carbon nanotubes connected by tunnel contacts. The problem of scattering of electromagnetic radiation by the chains was solved through the application of the integral equation technique of classical electrodynamics and the Landauer – Butti-ker formalism for quantum transport. It is shown that electron tunnelling between the nanotubes leads to the electromagnetic size effects in chains of finite length. In this case, in the gigahertz frequency range, there is a regime in which the comparable in magnitude real and imaginary parts of the effective permittivity of the composite medium decrease with increasing frequency that is often observed in experiments. It has been found that size effects can manifest themselves within small sections of the chain limited by contacts of low conductivity. The obtained results provide an understanding of the physical mechanisms responsible for the frequency dispersion of the permittivity of composite materials based on carbon nanotubes.

Keywords: carbon nanotube; composite medium; tunnel coupling; permittivity; gigahertz frequency range.

Acknowledgements. This research has been supported by Tomsk State University Competitiveness Improvement Program.

#### Введение

Такие свойства углеродных нанотрубок (УНТ), как большое аспектное отношение и высокая электрическая проводимость, обусловливают их использование в качестве высокоэффективного наполнителя композитных материалов для экранирования электромагнитных полей в гигагерцевом диапазоне частот [1; 2]. При низкой концентрации УНТ (единицы массовых процентов) композитные среды демонстрируют значительную эффективность экранирования электромагнитных помех (около 30 дБ для композитной пластинки толщиной 2 мм на частоте 12,4 ГГц) [3].

Распределяясь в композитной среде, УНТ формируют проводящую сеть [4–7]. Электронный транспорт вдоль проводящих путей реализуется последовательно по самим нанотрубкам и через туннельные контакты между ними. Контактная проводимость между соприкасающимися УНТ невысока (ме-

нее  $0,13G_0$ , где  $G_0=\frac{e^2}{\pi\hbar}=7,75\cdot 10^{-5}$  См [8]) и сравнима с проводимостью нанотрубки длиной около

1 мкм [9]. В связи с этим контактная проводимость оказывает существенное влияние на эффективную проводимость композитной среды на низких частотах.

Ранее для расчета электромагнитного отклика композитных сред на основе УНТ использовался подход Ватермана — Труэлла [10], в котором диэлектрическая проницаемость среды определялась через сумму поляризуемостей индивидуальных нанотрубок в единице объема. В таком приближении полагалось, что трубки не взаимодействуют друг с другом и туннельная связь между ними отсутствует. Эта модель позволила доказать, что наблюдаемый пик в терагерцевой области спектра проводимости композитного материала из однослойных УНТ обусловлен локализованным плазмонным резонансом в нанотрубках [10; 11]. Однако частотную дисперсию проводимости и значения тангенса угла диэлектрических потерь, наблюдаемые в области ниже этого пика, модель не взаимодействующих между собой частиц описывает неверно [12].

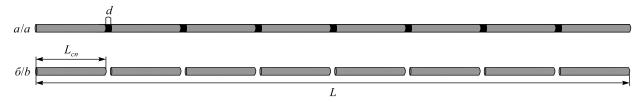
В настоящей работе рассмотрена композитная среда, состоящая из одинаковых цепочек УНТ, в которых нанотрубки имеют туннельную связь друг с другом. На примере такой модельной среды показано, как туннельная связь нанотрубок влияет на электромагнитные параметры композитной среды в гигагерцевом и субтерагерцевом спектральных диапазонах.



## Модель композитного материала с включениями из цепочек УНТ

Рассмотрим композитный материал с включениями из одинаковых случайно ориентированных прямолинейных цепочек, состоящих из последовательно соединенных через туннельные контакты сонаправленных металлических однослойных УНТ (цепочек УНТ (рис. 1, a)). Внутри композитной среды цепочки не соприкасаются друг с другом.

Цепочки УНТ характеризуются количеством N нанотрубок с равными радиусами R и длинами  $L_{cn}$ , а также набором контактных проводимостей между трубками  $G_i$ ,  $i \in [1, N-1]$ . Расстояние между соседними трубками цепочки равно d. Общая длина цепочки УНТ  $L = NL_{cn} + (N-1)d$ .



 $Puc.\ 1.$  Схематическое изображение цепочки УНТ с ненулевой (a) и нулевой  $(\delta)$  проводимостью туннельных контактов между трубками  $Fig.\ 1.$  Schematic illustration of carbon nanotube chain with non-zero (a) and zero (b) conductance of intertube junctions

Для расчета эффективной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_{\text{eff}}$  модельного композитного материала в приближении не взаимодействующих друг с другом цепочек будем использовать формулу Ватермана — Труэлла [10]:

$$\varepsilon_{\text{eff}} = \varepsilon_h + \frac{1}{3\varepsilon_0} \sum_{j} \int_{0}^{\infty} \alpha_j (L_{cn}, R) n_j (L_{cn}, R) dL_{cn} dR,$$

где  $\varepsilon_h$  — относительная диэлектрическая проницаемость композитной матрицы;  $\varepsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{-12}$  Ф/м. Множитель  $\frac{1}{3}$  возникает благодаря случайной ориентации цепочек УНТ в композитном материале. Функция распределения  $n_j(L_{cn},R)$  описывает концентрацию цепочек с нанотрубками длиной  $L_{cn}$  типа j, а функция  $\alpha_j(L_{cn},R)$  — поляризуемость цепочки. Индекс j перечисляет цепочки УНТ с разным количеством N нанотрубок и различным распределением проводимости туннельных контактов между трубками  $G_i$ ,  $i \in [1, N-1]$ .

Следуя работе [13], поляризуемость прямолинейной цепочки УНТ будем вычислять, используя метод интегральных уравнений классической электродинамики, объединенный с формализмом Ландауэра — Буттикера для квантового транспорта. Пусть цепочка УНТ расположена во внешнем поле плоской волны с круговой частотой  $\omega$  таким образом, что проекция внешнего поля на оси нанотрубок  $E_z(z,t)=E_z^0(z)\exp(-i\omega t)$ . Цепочка находится в среде с относительной диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_h$ . Выберем цилиндрическую систему координат  $(\rho, \varphi, z)$  с осью z, параллельной оси цепочки, так что последняя находится в интервале  $z\in[0,L]$ . На основе работы [13] поверхностная плотность аксиального тока в цепочке УНТ может быть найдена из решения интегрального уравнения Халлена:

$$\int_{0}^{L} \left[ \frac{1}{\sigma(z')} e^{ik|z-z'|} + \frac{Rk}{2\pi\varepsilon_{0}\varepsilon_{h}\omega} \int_{0}^{2\pi} G(R, \varphi, z-z') d\varphi \right] j(z')dz' = \Phi(z), \tag{1}$$

где  $\Phi(z) = \int_0^L E_z^0(z) e^{ik|z-z'|} dz' + A e^{ikz} + B e^{-ikz}$ , A и B — неизвестные константы, определяемые из граничных условий равенства нулю тока на концах цепочки.

$$G(R, \varphi, z - z') = \frac{\exp\left[ik\sqrt{(z - z')^2 + \left(2R\sin\frac{\varphi}{2}\right)^2}\right]}{\sqrt{(z - z')^2 + \left(2R\sin\frac{\varphi}{2}\right)^2}},$$



где  $k=\frac{\omega}{c},\ c$  — скорость света в вакууме. Аксиальная поверхностная проводимость цепочки  $\sigma(z)$  меняется скачками. Поверхностная проводимость УНТ описывается формулой Друде [14]:

$$\sigma_{\text{YHT}}(\omega) = \frac{2ie^2 v_F}{\pi^2 \hbar R(\omega + iv)},$$

где  $\upsilon_F \approx 10^6$  м/с – скорость электронов на уровне Ферми для УНТ;  $\upsilon = \tau^{-1}$ ,  $\tau$  – время электронной релаксации. Поверхностная проводимость в области контактов задается выражением

$$\sigma_i = \frac{G_i d}{2\pi R}, i \in [1, N-1].$$

Контактная проводимость  $G_i$  участка длиной  $d=\Delta+2\lambda_s$  согласно формализму Ландауэра — Буттикера может быть вычислена через коэффициенты T прохождения электронов через потенциальный барьер между УНТ [13; 15; 16]. Здесь  $\Delta$  — ширина барьера для электронов в месте контакта УНТ;  $\lambda_s$  — длина экранирования Томаса — Ферми, которая лежит в интервале нескольких радиусов УНТ [17]. Для однослойных металлических нанотрубок малого радиуса ( $R \approx 1$  нм) величина d находится в диапазоне нескольких нанометров [13]. Так как коэффициенты прохождения и скорости электронов одинаковы для обоих проводящих каналов металлической УНТ, то в приближении нулевой частоты и температуры контактная проводимость, определяемая четырехточечным методом, записывается в виде [16]

$$G_{4d} = 2G_0 \frac{T}{1 - T}.$$

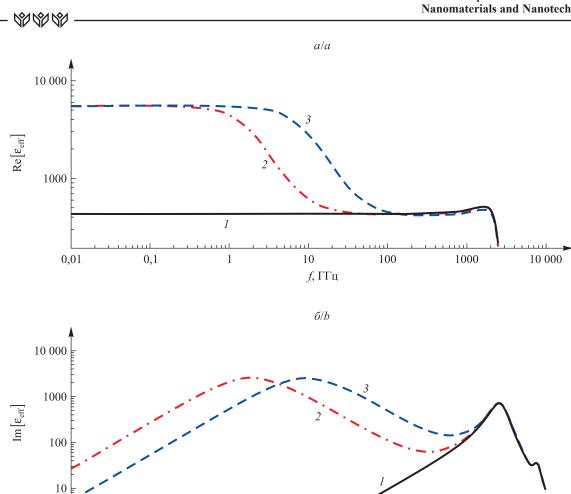
Следуя работе [13], в рассматриваемом частотном диапазоне (от 10 МГц до 10 ТГц) будем считать, что проводимость контактов между УНТ является чисто действительной и не зависит от частоты  $G_i(\omega) = G_i(0)$ . В общем случае динамическая проводимость туннельного контакта между трубками  $G_i(\omega)$  должна быть комплексной. При этом в частотном диапазоне ниже некоторой частоты проводимость  $G_i(\omega)$  может быть представлена как многочлен первой степени относительно частоты [18]:  $G_d(\omega) = G_d(0) + iB_d\omega$ , где  $B_d$  – константа. Частотный диапазон, для которого выполняется приведенное выше разложение, определяется условием  $\frac{v_F}{\omega} \gg d$  [15; 18]. Для значения d = 5 нм частота должна быть ниже 27 ТГц. В противном случае на участке длиной d, включающем туннельный барьер, возникнут пространственные колебания плотности тока, что может повлиять как на действительную, так и на мнимую часть проводимости  $G_i(\omega)$  [15]. В настоящей работе рассматривается случай, когда коэффициент прохождения электронов через контакт между трубками мал ( $T \ll 1$ ). Это соответствует выражению  $B_d = -C < 0$  [15; 19], где C – емкость участка длиной d, связанная со скоплением зарядов с двух сторон от туннельного барьера в пределах данного участка при отражении электронов от барьера. Для достаточно малых значений d величины этих зарядов будут значительно меньше величин зарядов, скапливающихся на трубках вблизи участка длиной d и учитываемых при решении уравнения ( $\hat{1}$ ), что позволяет положить  $B_d = -C = 0$ .

Уравнение (1) с помощью квадратурных формул преобразуется к матричному виду, а затем полученная система линейных уравнений решается численно относительно токов, текущих в цепочке УНТ. Отметим, что вычислительная сложность численного решения уравнения (1) значительно снижается, если принять, что в процессе дискретизации цепочки УНТ все ее элементы имеют одинаковую длину, включая контакты между трубками с длинами d. Зная распределение тока в цепочке УНТ, можно рассчитать ее поляризуемость [13]:

$$\alpha = \frac{2\pi i R}{\omega E_z^0} \int_0^L j(z) dz.$$

#### Численные результаты и их обсуждение

На рис. 2 приведены частотные зависимости действительных и мнимых частей эффективной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_{\rm eff}$  композитного материала с включениями из цепочек УНТ, состоящих из 4 нанотрубок с индексами (12,0) длиной  $L_{cn}=1$  мкм и радиусом R=0,47 нм, при одинаковых значениях проводимости контактов между трубками  $G_i=G_d,\,i=1,2,3$ . Также полагаем, что электронное время релаксации  $\tau=100$  фс,  $\varepsilon_h=1$  и объемная доля цепочек в среде составляет 0,01.



 $Puc.\ 2.$  Частотные зависимости действительной (a) и мнимой  $(\delta)$  частей эффективной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_{\rm eff}$  композитной среды, содержащей одинаковые цепочки УНТ. Каждая цепочка включает 4 нанотрубки, туннельно-связанные через одинаковую контактную проводимость  $G_d$ . Расчеты представлены для случаев:  $I-G_d=0$ ;  $2-G_d=0,002G_0$ ;  $3-G_d=0,01G_0$   $Fig.\ 2.$  Frequency dependencies of the real (a) and imaginary (b) parts of the effective permittivity  $\varepsilon_{\rm eff}$  of composite medium comprising identical carbon nanotube chains. Each chain consist of 4 nanotubes which are coupled through identical conductance  $G_d$ . Results are presented for the cases:  $I-G_d=0$ ;  $2-G_d=0.002G_0$ ;  $3-G_d=0.01G_0$ 

10

f, Г $\Gamma$ ц

0,01

0,1

1

100

1000

10 000

Из рис. 2,  $\delta$ , видно, что при отсутствии электронного туннелирования между трубками ( $G_d$  = 0) в спектре величины  $\operatorname{Im} \left[ \epsilon_{\operatorname{eff}} \right]$  на частоте 2,45 ТГц наблюдается характерный пик, соответствующий локализованному плазмонному резонансу в каждой УНТ [20]. При наличии электронного туннелирования между трубками в спектре  $\operatorname{Im} \left[ \epsilon_{\operatorname{eff}} \right]$  возникает второй (низкочастотный) пик в гигагерцевом диапазоне частот, наличие которого ранее было показано для систем из 2 туннельно-связанных УНТ [13; 21]. Частота данного пика снижается с уменьшением  $G_d$ , тогда как его высота при этом практически не изменяется.

При значениях проводимости контактов  $G_d = 0.01G_0$  и  $\hat{G}_d = 0.002G_0$  электронное туннелирование между УНТ практически не влияет на значение величины  $\varepsilon_{\rm eff}$  в области спектра выше частоты 1 ТГц. В области ниже 1 ТГц влияние туннелирования становится заметным и обусловливает следующие особенности.

- 1. Диссипация энергии вблизи контактов, возникающая при протекании тока через контакты с высоким сопротивлением, значительно превосходит диссипацию энергии на однородных участках цепочек УНТ [13; 21] и обусловливает высокое значение мнимой части диэлектрической проницаемости.
- 2. В области ниже частоты низкочастотного пика внешнее поле колеблется достаточно медленно, заряд за период колебания внешнего поля успевает беспрепятственно перетекать внутри цепочки через



контакты между трубками с низкой проводимостью, поэтому действительная часть диэлектрической проницаемости композитного материала такая же, как и для случая идеально проводящих контактов, и размерные эффекты определяются длинами цепочек УНТ. С уменьшением частоты деполяризующее поле в нанотрубках и в области контактов увеличивается, что обусловливает снижение величины  $\text{Im}[\epsilon_{\text{eff}}]$ .

3. В области, лежащей на высокочастотной стороне низкочастотного пика, колебания падающего поля происходят достаточно быстро для того, чтобы заряд в полной мере успевал перемещаться через контакты цепочки УНТ. Ослабление переноса заряда в цепочке с ростом частоты приводит к уменьшению величины  $\text{Re}\left[\epsilon_{\text{eff}}\right]$ . Вместе с тем снижается деполяризующее поле на контактах, и электрический ток в цепочке УНТ может быть описан как ток, текущий через подключенное к источнику с напряжением  $U=E_z^0L$  последовательное соединение сопротивлений нанотрубок и контактных сопротивлений. При этом напряжение U перераспределяется между однородными участками цепочек и контактами пропорционально их сопротивлению.

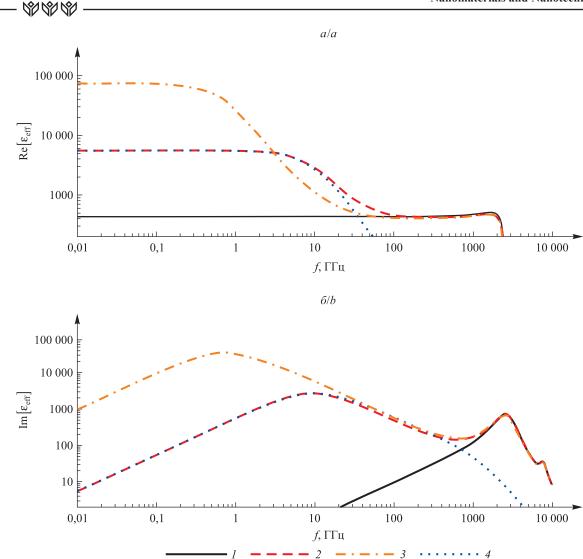
Далее рассмотрим, как спектр диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_{\rm eff}$  зависит от количества N нанотрубок в цепочке. Положим  $G_i = G_d = 0.01G_0$ ,  $L_{cn} = 1$  мкм, R = 0.47 нм,  $\varepsilon_h = 1$  и  $\eta = 0.01$ . На рис. 3 представлены спектры величин  ${\rm Re}\big[\varepsilon_{\rm eff}\big]$  и  ${\rm Im}\big[\varepsilon_{\rm eff}\big]$  для композитной среды из цепочек УНТ при различных N, а также для композитной среды из гипотетических нанотрубок той же длины L и поверхностной проводимости  $\sigma_0 = \frac{\sigma_{\rm YHT}}{36}$ . При этом сопротивление между концами гипотетической нанотрубки равно сопротивлению между концами цепочки УНТ. На рис. 3 показано, что на низких частотах диэлектрические проницаемости композита из цепочек УНТ и композита из гипотетических однородных нанотрубок совпадают (ср. штриховую линию и линию из точек). Это означает, что на малых частотах диэлектрическая проницаемость среды определяется длиной цепочек и их эффективной проводимостью.

Из рис. 3,  $\delta$ , видно, что с увеличением количества УНТ в цепочке частота низкочастотного пика в спектре  $\mathrm{Im}\big[\epsilon_{\mathrm{eff}}\big]$  убывает, а его амплитуда возрастает. При этом также наблюдается рост значения величины  $\mathrm{Re}\big[\epsilon_{\mathrm{eff}}\big(0\big)\big]$ . Подобное поведение диэлектрической проницаемости  $\epsilon_{\mathrm{eff}}$  характерно для композитной среды, образованной многослойными УНТ, при увеличении длины нанотрубок [22]. Как следует из рис. 3, при возрастании количества УНТ в цепочке с 4 до 16 увеличивается ширина диапазона частот, в котором мнимая и действительная части  $\epsilon_{\mathrm{eff}}$  спадают с ростом частоты. Подобная частотная дисперсия диэлектрической проницаемости наблюдается в композитных материалах [12; 23–25]. Отметим, что такая частотная дисперсия обусловлена размерными эффектами. Она не будет наблюдаться у композитной среды, состоящей из бесконечно длинных цепочек, где трубки связаны друг с другом одинаковым контактным сопротивлением.

Если в цепочке контакты между трубками имеют разное сопротивление, то размерные эффекты могут проявляться для участков цепочки, ограниченных контактами высокого сопротивления. Чтобы это продемонстрировать, на рис. 4 приведем диэлектрическую проницаемость композитной среды на основе цепочек УНТ, в которых проводимость каждого четвертого в цепочке контакта  $G_{d2}$  много меньше проводимости остальных контактов между трубками  $G_{d1}$ , т. е.  $G_{d2} \ll G_{d1}$ . Положим  $G_{d1} = 0.01G_0$  и  $G_{d2} = 0.000\,59G_0$ . Также на рис. 4 приведены параметры среды в случае, когда все трубки цепочки изолированы друг от друга ( $G_{d1} = G_{d2} = 0$ ); каждый четвертый контакт является непроводящим ( $G_{d2} = 0$ ); все контакты в цепочке имеют одинаковую проводимость ( $G_{d1} = G_{d2} = 0.002G_0$ ).

Из рис. 4 видно, что в частотном диапазоне выше 10 ГГц величина  $\varepsilon_{\rm eff}$  для случая, когда проводимости контактов в неоднородной цепочке УНТ составляют  $G_{d1}=0.01G_0$  и  $G_{d2}=0.000\,59G_0$ , практически совпадает с величиной  $\varepsilon_{\rm eff}$  для случая, когда короткие цепочки УНТ из 4 нанотрубок изолированы другот друга, т. е.  $G_{d1}=0.01G_0$  и  $G_{d2}=0$ . Это означает, что в данном частотном диапазоне туннелирование через контакты с низкой проводимостью  $G_{d2}=0.000\,59G_0$  слабо влияет на электромагнитный отклик композитной среды, так что последнюю можно рассматривать как среду, состоящую из цепочек с 4 УНТ и проводимостью контактов между трубками  $G_{d1}=0.01G_0$ .

На частотах ниже 3 ГГц заряд успевает частично перетекать через контакты с низкой проводимостью  $G_{d2}=0,000\,59G_0$ . В данном случае эффект конечной длины определяется длиной всей цепочки. При этом соотношение между проводимостями контактов становится несущественным, поскольку отклик цепочки на низких частотах определяется ее длиной и полным сопротивлением. Для сравнения был рассмотрен композитный материал, содержащий цепочки той же длины и того же полного сопротивления, но контактная проводимость между трубками выбиралась одинаковой ( $G_{d1}=G_{d2}=0,002G_0$ ). Из рис. 4 видно, что на частотах ниже 100 МГц сравниваемые композитные среды демонстрируют одинаковую диэлектрическую проницаемость.

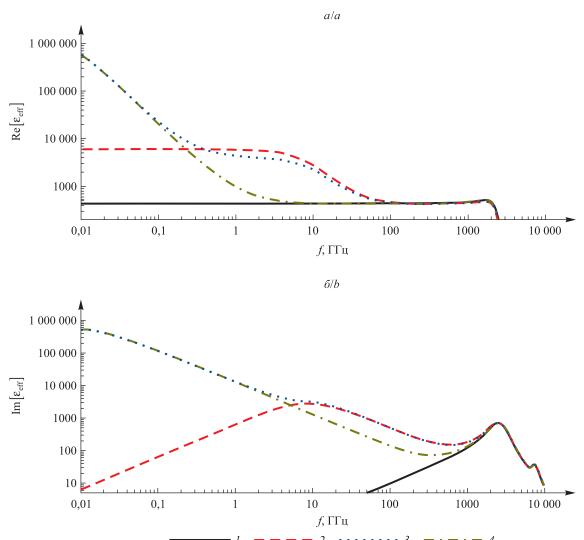


Puc.~3. Частотные зависимости действительной (a) и мнимой  $(\delta)$  частей эффективной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_{\mathrm{eff}}.~l-3$  – композитной среды, содержащей цепочки УНТ с различными параметрами  $(I-N=4,~G_i=0;~2-N=4,~G_i=G_d=0,01G_0;~3-N=16,~G_i=G_d=0,01G_0);~4$  – композитной среды, содержащей однородные гипотетические нанотрубки длиной L=4 мкм и проводимостью  $\sigma_0=\frac{\sigma_{\mathrm{УНТ}}}{2L}$ 

Fig. 3. Frequency dependencies of the real (a) and imaginary (b) parts of the effective permittivity  $\varepsilon_{\rm eff}$ : I-3- composite medium comprising carbon nanotube chains with different parameters (I-N=4,  $G_i=0$ ; 2-N=4,  $G_i=G_d=0.01G_0$ ; 3-N=16,  $G_i=G_d=0.01G_0$ ); 4- composite medium comprising uniform hypothetical nanotubes of length  $L=4~\mu m$  and conductivity  $\sigma_0=\frac{\sigma_{\rm YHT}}{36}$ 

Таким образом, результаты, полученные для композитных сред из цепочек УНТ, указывают на следующие механизмы взаимодействия электромагнитного поля и композитной среды. На низких частотах туннельная связь обусловливает протекание тока по проводящим путям, сформированным множеством относительно коротких нанотрубок и контактов между ними. Нанотрубки в каждом проводящем пути взаимосвязанно формируют электромагнитный отклик, который схож с откликом длинной гипотетической нанотрубки с сопротивлением, примерно равным сумме сопротивлений всех элементов, входящих в этот проводящий путь (ср. кривые 2 и 4 на рис. 3 на частотах ниже 10 ГГц). При этом для случая  $G_{d1} = 0.01G_0$  и  $G_{d2} = 0.000\,59G_0$  на рис. 4 в двух частотных интервалах – от 20 до 200 МГц и от 10 до 100 ГГц — имеет место режим, при котором сравнимые по величине действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости композитной среды уменьшаются с ростом частоты. Для интервала частот 20–200 МГц такой режим обусловлен размерными эффектами в рамках всей цепочки УНТ и не может быть реализован с использованием цепочек бесконечной длины при одинаковом контактном сопротивлении между УНТ. Однако такой режим реализуется в интервале частот 10–100 ГГц для достаточно длинной цепочки УНТ (потенциально бесконечно длинной), в которой контакты между нанотрубками имеют различное сопротивление.





*Рис. 4.* Частотные зависимости эффективной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_{\rm eff}$  композитного материала, содержащего одинаковые цепочки из 64 УНТ.

Рассмотрены следующие случаи:  $1-G_{d1}=G_{d2}=0;\,2-G_{d1}=0,\!01G_0,\,G_{d2}=0;\\3-G_{d1}=0,\!01G_0,\,G_{d2}=0,\!000\,59G_0;\,4-G_{d1}=G_{d2}=0,\!002G_0$ 

Fig. 4. Frequency dependencies of the effective permittivity  $\varepsilon_{\rm eff}$  of composite material comprising identical chains of 64 carbon nanotubes. The following cases were considered:  $1-G_{d1}=G_{d2}=0; 2-G_{d1}=0.01G_0, \ G_{d2}=0; \\ 3-G_{d1}=0.01G_0, \ G_{d2}=0.000\,59G_0; \ 4-G_{d1}=G_{d2}=0.002G_0$ 

В композитной среде контактное сопротивление между трубками может изменяться при переходе вдоль проводящих путей. На высоких частотах туннелирование через контакты с высоким сопротивлением ослабевает, и падающее поле взаимодействует с «более короткими» проводящими путями, ограниченными контактами высокого сопротивления. Поскольку с увеличением частоты ток прекращает течь через контакты с высоким сопротивлением, то последние перестают вносить вклад в эффективную проводимость композитной среды. Это обусловливает рост эффективной проводимости среды

#### Заключение

В микроволновом и терагерцевом диапазонах проведен анализ частотной зависимости эффективной диэлектрической проницаемости композитной среды, состоящей из одинаковых цепочек туннельно-связанных последовательно расположенных УНТ равной длины. Показано, что в спектре мнимой части диэлектрической проницаемости композитной среды наблюдаются два пика. Пик на высоких частотах (выше 1 ТГц), где туннелированием между нанотрубками можно пренебречь,

с частотой.



обусловлен локализованным плазмонным резонансом в отдельных УНТ. Широкий пик на низких частотах, где туннелирование между нанотрубками существенно, связан с размерным эффектом в цепочках УНТ.

В диапазоне частот между пиками имеет место режим, при котором сравнимые по величине мнимая и действительная части диэлектрической проницаемости увеличиваются с уменьшением частоты. Такое поведение экспериментально наблюдается в реальных композитных материалах и является результатом туннельной связи нанотрубок в среде.

На примере композитной среды, в которой контакты между трубками цепочек имеют различную проводимость, показано, что на низких частотах реализуются размерные эффекты, связанные с длиной всей цепочки, а на более высоких частотах имеют место размерные эффекты в отдельных частях цепочки, расположенных между туннельными контактами с низкой проводимостью.

#### Библиографические ссылки/References

- 1. Yonglai Yang, Gupta MC, Dudley KL. Towards cost-efficient EMI shielding materials using carbon nanostructure-based nanocomposites. *Nanotechnology*. 2007;18(34):345701. DOI: 10.1088/0957-4484/18/34/345701.
- 2. Ning Li, Yi Huang, Feng Du, Xiaobo He, Xiao Lin, Hongjun Gao, et al. Electromagnetic interference (EMI) shielding of single-walled carbon nanotube epoxy composites. *Nano Letters*. 2006;6(6):1141–1145. DOI: 10.1021/nl0602589.
- 3. Park SH, Thielemann P, Asbeck P, Bandaru PR. Enhanced dielectric constants and shielding effectiveness of, uniformly dispersed, functionalized carbon nanotube composites. *Applied Physics Letters*. 2009;94(24):243111. DOI: 10.1063/1.3156032.
- 4. Bao WS, Meguid SA, Zhu ZH, Pan Y, Weng GJ. Effect of carbon nanotube geometry upon tunneling assisted electrical network in nanocomposites. *Journal of Applied Physics*. 2013;113(23):234313. DOI: 10.1063/1.4809767.
- 5. Weibang Lu, Tsu-Wei Chou, Thostenson ET. A three-dimensional model of electrical percolation thresholds in carbon nanotube-based composites. *Applied Physics Letters*. 2010;96(22):223106. DOI: 10.1063/1.3443731.
- 6. Isichenko MB. Percolation, statistical topography, and transport in random media. *Reviews of Modern Physics*. 1992;64(4): 961–1043. DOI: 10.1103/RevModPhys.64.961.
- 7. Sandler JKW, Kirk JE, Kinloch IA, Shaffer MSP, Windle AH. Ultra-low electrical percolation threshold in carbon-nanotube-epoxy composites. *Polymer*. 2003;44(19):5893–5899. DOI: 10.1016/S0032-3861(03)00539-1.
- 8. Fuhrer MS, Nygård J, Shih L, Forero M, Young-Gui Yoon, Mazzoni MSC, et al. Crossed nanotube junctions. *Science*. 2000; 288(5465):494–497. DOI: 10.1126/science.288.5465.494.
- 9. Zhen Yao, Postma HWC, Balents L, Dekker C. Carbon nanotube intramolecular junctions. *Nature*. 1999;402(6759):273–276. DOI: 10.1038/46241.
- 10. Slepyan GYa, Shuba MV, Maksimenko SA, Thomsen C, Lakhtakia A. Terahertz conductivity peak in composite materials containing carbon nanotubes: theory and interpretation of experiment. *Physical Review B*. 2010;81(20):205423. DOI: 10.1103/Phys-RevB.81.205423.
- 11. Shuba MV, Paddubskaya AG, Plyushch AO, Kuzhir PP, Slepyan GYa, Maksimenko SA, et al. Experimental evidence of localized plasmon resonance in composite materials containing single-wall carbon nanotubes. *Physical Review B*. 2012;85(16):165435. DOI: 10.1103/PhysRevB.85.165435.
- 12. Shuba MV, Paddubskaya AG, Kuzhir PP, Maksimenko SA, Flahaut E, Fierro V, et al. Short-length carbon nanotubes as building blocks for high dielectric constant materials in the terahertz range. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 2017;50(8):08LT01. DOI: 10.1088/1361-6463/aa5628.
- 13. Shuba MV, Melnikov AV, Kuzhir PP, Maksimenko SA, Slepyan GY, Boag A, et al. Integral equation technique for scatterers with mesoscopic insertions: application to a carbon nanotube. *Physical Review B*. 2017;96(20):205414. DOI: 10.1103/Phys-RevB.96.205414.
- 14. Slepyan GYa, Maksimenko SA, Lakhtakia A, Yevtushenko O, Gusakov AV. Electrodynamics of carbon nanotubes: dynamic conductivity, impedance boundary conditions, and surface wave propagation. *Physical Review B*. 1999;60(24):17136–17149. DOI: 10.1103/PhysRevB.60.17136.
- 15. Kamenev A, Kohn W. Landauer conductance without two chemical potentials. *Physical Review B*. 2001;63(15):155304. DOI: 10.1103/PhysRevB.63.155304.
- 16. Büttiker M, Imry Y, Landauer R, Pinhas S. Generalized many-channel conductance formula with application to small rings. *Physical Review B*. 1985;31(10):6207–6215. DOI: 10.1103/PhysRevB.31.6207.
- 17. Odintsov AA, Tokura Y. Contact phenomena in carbon nanotubes. *Physica B: Condensed Matter*. 2000;284–288(part 2):1752–1753. DOI: 10.1016/S0921-4526(99)02920-8.
- 18. Büttiker M, Prêtre A, Thomas H. Dynamic conductance and the scattering matrix of small conductors. *Physical Review Letters*. 1993;70(26):4114–4117. DOI: 10.1103/PhysRevLett.70.4114.
- 19. Christen T, Büttiker M. Low frequency admittance of a quantum point contact. *Physical Review Letters*. 1996;77(1):143–146. DOI: 10.1103/PhysRevLett.77.143.
- 20. Slepyan GYa, Shuba MV, Maksimenko SA, Lakhtakia A. Theory of optical scattering by achiral carbon nanotubes and their potential as optical nanoantennas. *Physical Review B*. 2006;73(19):195416. DOI: 10.1103/PhysRevB.73.195416.
- 21. Melnikov AV, Kuzhir PP, Maksimenko SA, Slepyan GY, Boag A, Pulci O, et al. Scattering of electromagnetic waves by two crossing metallic single-walled carbon nanotubes of finite length. *Physical Review B*. 2021;103(7):075438. DOI: 10.1103/PhysRevB. 103.075438.



- 22. Shuba MV, Melnikov AV, Paddubskaya AG, Kuzhir PP, Maksimenko SA, Thomsen C. Role of finite-size effects in the microwave and subterahertz electromagnetic response of a multiwall carbon-nanotube-based composite: theory and interpretation of experiments. *Physical Review B*. 2013;88(4):045436. DOI: 10.1103/PhysRevB.88.045436.
- 23. Shuba M, Yuko D, Bychanok D, Liubimau A, Meisak D, Bochkov I, et al. Comparison of the electrical conductivity of polymer composites in the microwave and terahertz frequency ranges. In: 2017 IEEE International conference on microwaves, antennas, communications and electronic systems (COMCAS); 2017 November 13–15; Tel Aviv, Israel. [S. 1.]: IEEE; 2017. p. 616–618. DOI: 10.1109/COMCAS.2017.8244754.
- 24. Changshu Xiang, Yubai Pan, Jingkun Guo. Electromagnetic interference shielding effectiveness of multiwalled carbon nanotube reinforced fused silica composites. *Ceramics International*. 2007;33(7):1293–1297. DOI: 10.1016/j.ceramint.2006.05.001.
- 25. Grimes CA, Mungle C, Kouzoudis D, Fang S, Eklund PC. The 500 MHz to 5.50 GHz complex permittivity spectra of single-wall carbon nanotube-loaded polymer composites. *Chemical Physics Letters*. 2000;319(5–6):460–464. DOI: 10.1016/S0009-2614(00)00196-2.

Получена 01.04.2021 / исправлена 18.05.2021 / принята 18.05.2021. Received 01.04.2021 / revised 18.05.2021 / accepted 18.05.2021.