

## МОДЕЛЮВАННЯ ЧАСТОТНИХ ЗАЛЕЖНОСТЕЙ ЕЛЕКТРИЧНИХ ТА ДІЕЛЕКТРИЧНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ СИСТЕМ НА ОСНОВІ ПОЛІЕТЕРІВ

**Е. А. Лисенков<sup>1</sup>, В. В. Клепко<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>*Миколаївський національний університет ім. В. О. Сухомлинського,  
Миколаїв, Україна,*

<sup>2</sup>*Інститут хімії високомолекулярних сполук НАН України,  
Київ, Україна*

Надійшла до редакції 17.07.2016

Використовуючи метод імпедансної спектроскопії досліджено частотні залежності електричних та діелектричних характеристик систем на основі поліетерів та вуглецевих нанотрубок (ВНТ). Показано, що в області перколяційного переходу частотні залежності електричних та діелектричних характеристик можна описати у рамках теорії перколяції, використовуючи універсальні скейлінгові закони. Результати моделювання частотних залежностей електричних та діелектричних характеристик проаналізовано у рамках моделі міжкластерної поляризації та моделі аномальної дифузії. Встановлено, що модель міжкластерної поляризації краще підходить для опису перколяційної поведінки систем поліетер-ВНТ.

**Ключові слова:** перколяційна поведінка, полімерні нанокомпозити, електропровідність, діелектрична проникність, вуглецеві нанотрубки.

## МОДЕЛИРОВАНИЕ ЧАСТОТНЫХ ЗАВИСИМОСТЕЙ ЭЛЕКТРИЧЕСКИХ И ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ СВОЙСТВ СИСТЕМ НА ОСНОВЕ ПОЛИЭФИРОВ

**Э. А. Лысенков, В. В. Клепко**

Используя метод импедансной спектроскопии, исследованы частотные зависимости электрических и диэлектрических характеристик систем на основе полиэфиров и углеродных нанотрубок (УНТ). Показано, что в области перколяционного перехода частотные зависимости электрических и диэлектрических характеристик можно описать в рамках теории перколяции, используя универсальные скейлинговые законы. Результаты моделирования частотных зависимостей электрических и диэлектрических характеристик проанализированы в рамках модели межкластерной поляризации и модели аномальной диффузии. Установлено, что модель межкластерной поляризации лучше подходит для описания перколяционного поведения систем полиэфир-УНТ.

**Ключевые слова:** перколяционное поведение, полимерные нанокомпозиты, электропроводимость, диэлектрическая проницаемость, углеродные нанотрубки.

## MODELLING OF FREQUENCY DEPENDENCES OF ELECTRIC AND DIELECTRIC PROPERTIES OF THE SYSTEMS BASED ON POLYETHERS

**E. A. Lysenkov, V. V. Klepko**

Frequency dependences of electric and dielectric descriptions of the systems based on polyethers and carbon nanotubes (CNT) are investigated using the method of impedance spectroscopy. It is revealed that in area of percolation transition, frequency dependences of electric and dielectric descriptions can be described within the framework of the percolation theory, using universal scaling laws. The results of modelling of frequency dependences of electric and dielectric descriptions are analysed within the framework of the intercluster polarization model and the anomalous diffusion model. It is set that the percolation behavior of the polyether-CNT systems can be described within the framework intercluster polarization model.

**Keywords:** percolation behavior, polymer nanocomposites, electrical conductivity, dielectric constant, carbon nanotubes.

**ВСТУП**

Полімерні нанокомпозити, наповнені ВНТ, викликають підвищену увагу дослідників у зв'язку з перспективами їх застосування в різних областях техніки [1]. Дисперговані у непровідну полімерну матрицю ВНТ значно підвищують електропровідність таких нанокомпозитів. Електропровідність композиту значно залежить від вмісту нанотрубок, морфології провідної перколяційної сітки та числа контактів між ВНТ [2]. Інші фактори, такі як розмір, геометрична форма і твердість електропровідних наноімпровісачів, їх розподіл, властивості полімерної матриці та методи приготування нанокомпозитів також впливають на електропровідність та процес перколяції [1, 2]. При деякому вмісті нанотрубок завдяки утворенню перколяційної сітки з ВНТ непровідна полімерна матриця починає проводити електричний струм.

Полімерні нанокомпозити, наповнені ВНТ, характеризуються унікальними діелектричними властивостями. Результати численних досліджень показують, що діелектричні властивості нанокомпозитів залежать від діелектричних характеристик полімерної матриці, методу приготування матеріалів, міжфазної взаємодії між наповнювачем та полімером, розміру та форми наповнювачів [3]. Ванг та Данг досліджували залежність діелектричних властивостей від частоти та різного вмісту наповнювача для нанокомпозитів на основі полівініліденфториду та необроблених ВНТ [4]. Встановлено, що в області низьких частот діелектрична проникність матеріалу, який містить 1,6 об. % ВНТ, суттєво зростає, у той час як діелектричні втрати значно зростають при наповненнях більших від 1,6 %. При цьому діелектричні втрати не залежали від частоти, а їх значення не перевищувало 0,4. Таку поведінку діелектричних характеристик автори зв'язують із перколяційним переходом та утворенням нескінченного кластера із ВНТ. Низьке значення порогу перколяції для систем ПВДФ–ВНТ пояснюється великим аспектним відношенням ВНТ. Тіварі та ін. вивчали діелектричні характеристики композитів на основі політіофену та ВНТ [5]. Присутність у системі ВНТ збільшує діелектричну проникність матеріалу у всьому температурному та частотному діапазонах.

Автори встановили, що важливу роль для збільшення діелектричних властивостей відіграють міжфазна поляризація на нанорозмірі ВНТ.

Отже, аналіз електропровідності при змінному струмі та діелектричної проникності використовується для отримання більш детальної інформації про мікроскопічну структуру досліджуваних систем через макроскопічні фізичні характеристики. Тому метою даної роботи було дослідження частотних залежностей електричних та діелектричних характеристик модельних полімерних нанокомпозитів на основі поліетерів, наповнених ВНТ, а також встановлення механізмів переносу заряду за допомогою моделювання цих залежностей.

**ТЕОРЕТИЧНА ЧАСТИНА**

Згідно з теорією перколяції [6, 7], поблизу порогу перколяції  $p_c$  існує характеристична кореляційна довжина  $\xi$ , яка пропорційна  $|p - p_c|^{-\nu}$ . Ця кореляційна довжина, яка може відхиляється від переходу діелектрик-провідник у обидві сторони, пов'язана із багатьма властивостями композиту: наприклад, ймовірністю частинці наповнювача належати перколяційному кластеру  $P(p)$ , яка пропорційна  $\xi^{-\beta}$  або  $|p - p_c|^\beta$ , за умови, що  $p > p_c$ .

Скейлінговий підхід передбачає, що властивості фізичних величин таких як, наприклад, електрична провідність постійного струму  $\sigma(\omega = 0, p > p_c)$  та діелектрична проникність  $\epsilon(\omega = 0, p < p_c)$  перколяційної системи, повинні показувати степеневу залежність від кореляційної довжини  $\xi$ . Після досягнення системою порогу перколяції ( $p > p_c$ ),  $\sigma(0, p)$  пропорційна величині  $\xi^{-\frac{t}{\nu}}$  або  $|p - p_c|^t$ . В області концентрацій наповнювача до досягнення системою порогу перколяції ( $p < p_c$ ),  $\epsilon(0, p)$  пропорційна величині  $\xi^{\frac{s}{\nu}}$  або  $|p - p_c|^{-s}$ .

Ці степеневі закони є універсальними, тобто, критичні індекси, які є показниками степенів у цих законах, залежать, перш за все, від розмірності перколяційних систем, і не залежать від особливостей геометричних структур або взаємодій між ними.

Поблизу порогу перколяції ( $p \approx p_c$ ) частотну залежність електропровідності при змінному струмі,  $\sigma_{AC}(\omega, p_c)$  та діелектричної проникності  $\varepsilon(\omega, p_c)$  можна описати, використовуючи наступні степеневі закони [7, 8]:

$$\sigma_{AC}(\omega, p_c) \sim \omega^x, \quad (1)$$

$$\varepsilon(\omega, p_c) \sim \omega^y. \quad (2)$$

Критичні індекси  $x$  та  $y$  задовольняють співвідношення:

$$x + y = 1. \quad (3)$$

Частотні залежності електропровідності при змінному струмі та діелектричної проникності досліджуваних систем можна описати у рамках однієї з двох існуючих моделей [9]: моделі міжкластерної поляризації [10, 11] та моделі аномальної дифузії всередині кластерів [7]. Ці дві моделі пояснюються положеннями теорії перколяції.

У рамках моделі міжкластерної поляризації електропровідність нанонаповнених систем можна описати у рамках еквівалентної схеми  $R-C$  (резистор-конденсатор). Для системи полімер-наповнювач резисторами є електропровідні кластери із ВНТ, а конденсаторами — проміжки між цими кластерами. Як відомо, ВНТ, які мають велику анізотропію форми, можуть контактувати між собою та утворювати тривимірну перколяційну сітку у всьому об'ємі матеріалу. При концентраціях, набагато більших за поріг перколяції ( $p \gg p_c$ ), загальна електропровідність системи, переважно визначається вкладом ВНТ (резисторного елемента) завдяки утворенню прямих контактів. У цьому випадку вклад ємнісного елемента, який визначається проміжками між кластерами, незначний. З іншого боку, при концентраціях ВНТ поблизу порога перколяції ( $p \approx p_c$ ), утворюється незначна кількість прямих контактів, тому вклад міжкластерні ємності дуже великий.

Розглядаючи лише міжкластерні поляризаційні ефекти, можна визначити критичні індекси  $x$  та  $y$  через отримані експериментально критичні індекси електропровідності, використовуючи наступні співвідношення:

$$x = \frac{t}{t+s}, \quad (4)$$

$$y = \frac{s}{t+s}. \quad (5)$$

Окрім міжкластерних поляризаційних ефектів, в системах, наповнених електропровідним наповнювачем, існують ефекти, пов'язані з аномальною дифузією всередині перколяційних кластерів [7]. У моделі аномальної дифузії транспортні властивості перколяційної структури представляються як проблема «випадкових блукань» або броунівського руху у перколяційному кластері. Основною причиною аномальної дифузії є фрактальна природа нескінченного перколяційного кластера. У фрактальному середовищі дифузійний процес відбувається з іншою швидкістю ніж у нефрактальному, тому дифузія називається аномальною. В основі моделі аномальної дифузії лежить припущення про те, що в масштабі розмірів, які лежать в межах між періодом кристалічної ґратки та перколяційною кореляційною довжиною  $\xi$ , провідні кластери являють собою собіподібні фрактали. Для систем з високою електропровідністю ( $p \gg p_c$ ) електрони можуть вільно проходити через утворені нескінченні кластери. Однак, у системах, у яких вміст наповнювача близький до порогу перколяції ( $p \rightarrow p_c$ ), утворюється невелика кількість провідних шляхів з перколяційних кластерів, тому рух електронів у обмежених кластерах має вирішальну роль. При деякій частоті  $\omega$  електрони проходять відстань  $r_\omega$ . Відповідно до моделі аномальної дифузії, якщо  $r_\omega < \xi$ , то, очевидно, що електропровідність зростатиме при збільшенні частоти. Зі зменшенням наповнювача в системі кількість провідних шляхів з перколяційних кластерів зменшується, а носії зарядів починають рухатися вздовж них більше часу, тому аномальна дифузія починається при нижчих частотах. За умови, що  $p < p_c$ , нескінченний кластер не утворюється, носії зарядів рухаються тільки в обмежених кластерах, тому провідність при постійному струмі не залежить від частоти.

Відповідно до моделі аномальної дифузії для визначення критичних індексів  $x$  та  $y$  можна скористатися співвідношеннями: [7]:

$$x = \frac{t}{v(2+\theta)}, \quad (6)$$

$$y = \frac{2\nu - \beta}{\nu(2 + \theta)}, \quad (7)$$

де  $\nu$  та  $\theta$  — критичні індекси, які залежать в основному від розмірності перколяційної системи.

Оскільки  $s = 2\nu - \beta$  [7], рівн. (7) можна переписати з урахуванням критичного індексу електропровідності:

$$y = \frac{s}{\nu(2 + \theta)}. \quad (8)$$

Індекси, які визначаються рівняннями (4)–(5) та (6)–(8), мають задовольняти головне скейлінгове співвідношення (3).

## ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНА ЧАСТИНА

Для дослідження використовували модельні системи на основі поліетерів одного гомологічного ряду та вуглецевих нанотрубок. Для приготування зразків в якості полімерних матриць використовували наступні поліетери.

Поліетиленгліколь (ПЕГ 400),  $\text{HO}[-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O}]_n\text{H}$  ( $n \approx 9$ ) молекулярної маси  $M_w = 400$ , виробництва компанії Aldrich. При  $T = 298$  К ПЕГ-400 є рідиною з густиною  $\rho = 1225$  кг/м<sup>3</sup> та в'язкістю  $\eta \approx 120$  мПа·с.

Поліетиленоксид (ПЕГ 10000),  $\text{HO}[-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O}]_n\text{H}$  ( $n \approx 225$ ) молекулярної маси  $M_w = 10000$ , виробництва компанії Aldrich, був обраний полімерною матрицею. При  $T = 298$  К ПЕГ-10000 є твердою речовиною з густиною  $\rho = 1070$  кг/м<sup>3</sup>. Температура плавлення  $T_{\text{пл}} \approx 335\text{--}338$  К.

Поліпропіленгліколь (ППГ 400),  $\text{HO}[-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)\text{O}]_n\text{H}$  ( $n \approx 9$ ) молекулярної маси  $M_w = 400$ , виробництва компанії Aldrich. При  $T = 298$  К ППГ-400 є рідиною з густиною  $\rho = 1010$  кг/м<sup>3</sup> та в'язкістю  $\eta \approx 100$  мПа·с.

Політетраметиленгліколь (ПТМГ 1000),  $\text{HO}[-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O}]_n\text{H}$  ( $n \approx 14$ ) молекулярної маси  $M_w = 1000$ , виробництва компанії Aldrich, був обраний полімерною матрицею. При  $T = 298$  К ПТМГ-1000 є твердою речовиною з густиною  $\rho = 974$  кг/м<sup>3</sup>. Температура плавлення  $T_{\text{пл}} \approx 298\text{--}306$  К.

Перед використанням поліетери зневоднювали нагріванням у вакуумі протягом чотирьох годин при 353–373 К при залишковому тиску 300 Па.

Багатошарові ВНТ виробництва ВАТ «Спецмаш» (Україна) виготовлені з етилену методом хімічного осадження парів (CVD), використовуючи FeAlMo каталізатор. Вміст мінеральних домішок складає не більше 0,1 %. Пітома поверхня — 190 м<sup>2</sup>/г, зовнішній діаметр — 20 нм, довжина (5–10) мкм, аспектно відношення  $L/d \approx 250\text{--}500$ . Густина ВНТ дорівнює густині чистого графіту і становить  $\rho = 2045$  кг/м<sup>3</sup>.

Наноккомпозити готували методом ультразвукового змішування у рідкому стані (для ПЕГ-10000 у розплаві при температурі 80 °С) за допомогою ультразвукового диспергатора УЗД 22/44. Диспергація тривала безперервно протягом 3 хв на частоті 22 кГц, потужність ультразвуку становила 400 Вт. Вміст ВНТ варіювали у межах (0,1–1) мас. % (далі %).

Дослідження електричних властивостей проводили використовуючи метод імпедансної спектроскопії, реалізованої на базі імпедансметра Z-2000 (Росія). Зразок поміщали між електродами комірки, при цьому вимірювали його дійсну ( $Z'$ ) та уявну ( $Z''$ ) частини імпедансу в залежності від частоти. Із залежностей комплексного імпедансу були визначені частотні залежності електропровідності та діелектричної проникності, використовуючи методику, описану в [12]. Виміри проводили при кімнатній температурі у частотному діапазоні 1–2 МГц. Постійний зазор між електродами становив 0,11 мм.

## РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

За допомогою методу діелектричної релаксаційної спектроскопії проведено дослідження діелектричних та електричних властивостей наноккомпозитів на основі поліетерів та ВНТ. Частотні залежності діелектричної проникності  $\epsilon$  для наноккомпозитів на основі ППГ-400 приведені на рис. 1.

Аналіз представлених на рис. 1а. залежностей  $\epsilon(f)$  показує, що високі значення  $\epsilon$  при частотах <100 Гц пов'язані з ефектом блокування електродів, викликаним поляризацією об'ємного заряду [13]. При частоті 10 Гц діелектрична проникність систем, наповнених ВНТ, становить  $\sim 10^5$ . Зазвичай такі значення не відповідають класичній поведінці ком-плексної діелектричної проникності, а скоріш за все є наслідком різкого

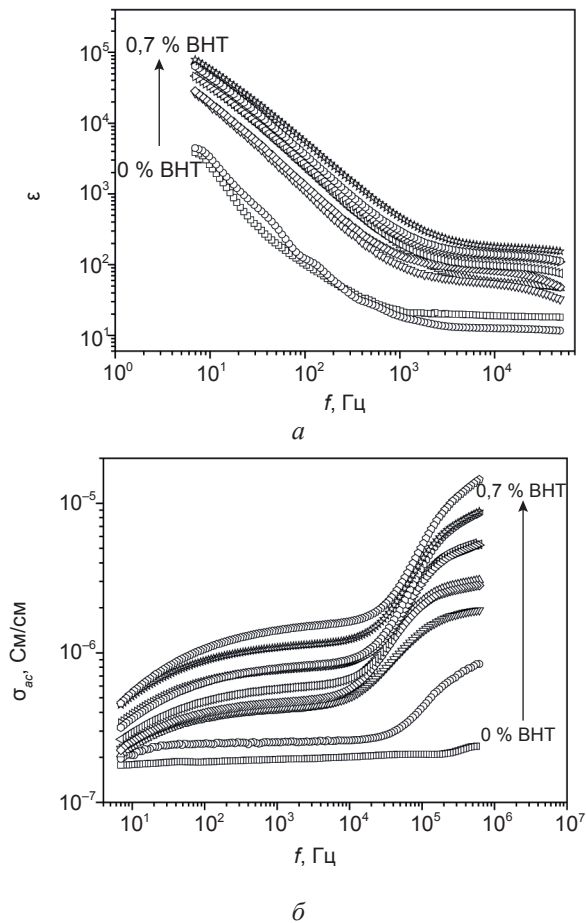


Рис. 1. Частотні залежності діелектричної постійної (а) та електропровідності (б) для нанокompозитних систем на основі ППГ-400 при кімнатній температурі

збільшення концентрації «вільних» зарядів на межі розподілу полімер-ВНТ. У полімерній матриці, макромолекули якої є дуже рухливими (аморфна матриця ППГ), при частотах, менших за 1 кГц, заряди на межі розподілу полімер-ВНТ концентруються раніше ніж зміниться полярність електричного поля, що і призводить до великих значень  $\epsilon$ . З підвищенням частоти не вистачає часу для концентрації зарядів на межі розподілу з ППГ, а вистачає тільки на концентрування зарядів на границях провідних мікрофаз та на кінцях провідних шляхів. Це явище призводить до так званої «релаксації провідності» і фактично відображає розподіл часів релаксації провідності [14, 15].

Електрична провідність  $\sigma(f)$  як функція частоти для систем на основі ППГ з різною концентрацією ВНТ приведена на рис. 1б. Для концентрацій ВНТ, значно менших від порогу перколяції, графік функції  $\sigma(f)$  є прямою лінією з нахилом близьким до 1, що є характеристикою ізолюючих матеріалів. Проте,

для концентрацій нанотрубок, близьких до порогу перколяції ( $p \approx p_c$ ), графік функції  $\sigma(f)$  проявляє характерну поведінку, яку можна із високою ступінню точності описати законом типу [16]:

$$\sigma(f) = \sigma_{AC} + \sigma_{DC} = \sigma_{DC} + Af^m, \quad (9)$$

де  $\sigma_{DC}$  — електропровідність постійного струму, яка не залежить від частоти,  $m$  — показник степеня,  $0 < m < 1$ . Цей закон визначає критичну частоту  $f_c$ , вище за яку  $\sigma(f) = \sigma_{AC} \propto f^m$ .

Використовуючи підхід, запропонований у [17], для визначення критичного індексу  $x$  залежності  $\sigma(f)$  побудуємо у приведених координатах  $\sigma_{AC}/\sigma_{DC}$  від  $f/f_c$ . Для визначення критичного індексу  $y$  залежності  $\epsilon(f)$  аналогічним чином побудуємо у приведених координатах  $\epsilon/\epsilon_0$  від  $f/f_c$ , де  $\epsilon_0$  — значення діелектричної проникності за умови, що  $\epsilon$  не залежить від частоти. Результати побудови експериментальних даних з рис. 1 у приведених вище координатах показані на рис. 2.

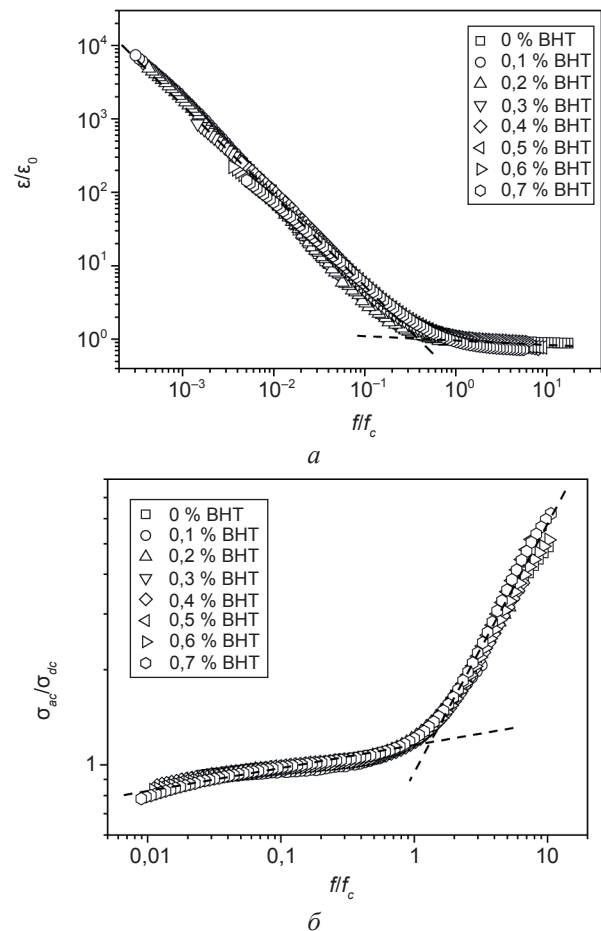


Рис. 2. Залежності діелектричної постійної (а) та електропровідності (б) від частоти у приведених координатах для нанокompозитних систем на основі ППГ-400

З рис. 2. видно, що всі залежності  $\epsilon(f)$  та  $\sigma(f)$ , які відповідали різним концентраціям ВНТ (близьким до  $p_c$ ), накладаються на одну криву. Із цих кривих можна вирахувати нахили лінійних ділянок для визначення критичних індексів  $x$  та  $y$  з рівн. (1) та (2).

Відповідно до методики, описаної вище, визначали критичні індекси  $x$  та  $y$  для систем на основі інших досліджуваних поліетерів: ПЕГ-400, ПЕГ-10000 та ПТМГ-1000. Значення визначених із експериментальних даних індексів  $x$  та  $y$  приведені у табл. 1. З табл. 1 видно, що значення критичного індексу  $y$  для деяких досліджуваних систем є завищеним, що призводить до не виконання універсального скейлінгового співвідношення (3). Такі завищені значення  $y$  виникають завдяки високій ( $y$  порівнянні з іншими класичними полімерними матеріалами) власній електропровідності поліетерної матриці. Висока електропровідність приводить до виникнення явища «релаксації провідності», яке проявляється у високих значеннях діелектричної проникності при низьких частотах (рис. 1а). Саме нахил цієї низькочастотної ділянки і визначає критичний індекс  $y$ , а явище «релаксації провідності» маскує дійсні значення  $\epsilon$ . Тому значення  $y$  є не завжди коректними для систем із високою власною провідністю.

Для аналізу даних у рамках моделі міжкластерної поляризації у рівн. (4) та (5) підставили значення  $t$  та  $s$ , отримані з експериментальних залежностей  $\sigma(p)$  та  $\epsilon(p)$ . Розраховані значення  $x$  та  $y$  для даної моделі приведені у табл. 1.

Для аналізу даних у рамках моделі аномальної дифузії у рівн. (6) та (8) підставили значення  $t$  та  $s$ , отримані з експериментальних залежностей  $\sigma(p)$  та  $\epsilon(p)$ , та відомі

з літератури значення для  $\nu$  та  $\theta$ , які були розраховані в роботі [7] (для тривимірної системи  $d = 3$ ,  $\theta = 1,5$  та  $\nu = 0,88$ ). Отримані значення  $x$  та  $y$  для даної моделі приведені у табл. 1.

У результаті аналізу даних табл. 1 можна зробити висновок, що отримані з експериментальних даних значення критичних індексів  $x$  та  $y$  значно ближчі до значень, розрахованих у рамках моделі міжкластерної поляризації, ніж до значень, отриманих у рамках моделі аномальної дифузії. Значна відмінність між критичними індексами, отриманими з експериментальних даних та розрахованими відповідно моделі аномальної дифузії, пояснюється тим фактом, що дана модель не враховує тунельних переходів між розділеними між собою кластерами ВНТ та інші транспортні ефекти, такі як захоплення та перескок зарядів між кластерами [18, 19].

### ВИСНОВКИ

У результаті проведеної роботи досліджено частотні залежності електричних та діелектричних характеристик систем на основі поліетерів та ВНТ. Встановлено, що при низьких частотах для нанопоповнених систем на основі поліетерів спостерігаються ефекти блокування електродів, що приводить до маскування діелектричних характеристик. Також для досліджуваних систем має місце явище релаксації провідності, яка виникає через високу власну електропровідність полімерних матриць. Показано, що частотні залежності електричних та діелектричних характеристик в околі перколяційного переходу можна описати за допомогою універсальних скейлінгових законів. У результаті моделювання були визначені критичні індекси

Таблиця 1

**Значення критичних індексів  $x$  та  $y$  для різних методів визначення**

Назва системи	Експериментальні значення		Модель міжкластерної поляризації		Модель аномальної дифузії	
	$x$	$y$	$x$	$y$	$x$	$y$
ПЕГ-400 – ВНТ	0,83	0,90	0,63	0,37	0,38	0,62
ПЕГ-10000 – ВНТ	0,72	0,76	0,86	0,14	0,61	0,39
ППГ-400 – ВНТ	0,69	1,06	0,72	0,28	0,37	0,63
ПТМГ-1000 – ВНТ	0,65	0,42	0,71	0,29	0,47	0,53

електропровідності та діелектричної проникності при змінному струмі. Розраховані критичні індекси проаналізували у рамках моделі міжкластерної поляризації та моделі аномальної дифузії. Встановлено, що модель міжкластерної поляризації краще підходить для опису перколяційної поведінки систем поліетер-ВНТ. Це свідчить про значний вплив поверхневих (міжфазних) шарів на процеси переносу заряду та загальну електропровідність систем на основі поліетерів та ВНТ.

## ЛІТЕРАТУРА

1. Елецкий А. В., Книжник А. А., Потапкин Б. В., Кенни Х. М. Электрические характеристики полимерных композитов, содержащих углеродные нанотрубки // УФН. — 2015. — Т. 185, № 3. — С. 225–270.
2. Bauhofer W., Kovacs J. Z. A review and analysis of electrical percolation in carbon nanotube polymer composites // Composites Science and Technology. — 2009. — Vol. 69. — P. 1486–1498.
3. Dang Z. M., Zhang Y. H., Tjong S. C. Dependence of dielectric behavior on the physical property of fillers in the polymer-matrix composites // Synth. Met. — 2004. — Vol. 146. — P. 79–84.
4. Wang L., Dang Z. -M. Carbon nanotube composites with high dielectric constant at low percolation threshold // Appl. Phys. Lett. — 2005. — Vol. 87. — P. 042903-1–042903-3.
5. Tiwari D. C., Sen V., Sharma R. Temperature dependent studies of electric and dielectric properties of polythiophene based nano composite // Indian Journal of Pure & Applied Physics. — 2012. — Vol. 50. — P. 49–56.
6. Stauffer D, Aharony A. Introduction to percolation theory. — London: Taylor and Francis, 1994. — 318 p.
7. Gefen Y., Aharony A., Alexander S. Anomalous diffusion on percolating clusters // Phys. Rev. Lett. — 1983. — Vol. 50, No. 1. — P. 77–80.
8. Bergman D. J., Imry Y. Critical Behavior of the Complex Dielectric Constant near the Percolation Threshold of a Heterogeneous Material // Phys. Rev. Lett. — 1977. — Vol. 39. — P. 1222–1225.
9. Song Y., Noh T. W., Lee S. I., Gaines J. R. Experimental study of the three-dimensional AC conductivity and dielectric constant of a conductor-insulator composite near the

- percolation threshold // Phys. Rev. B. — 1986. — Vol. 33, No. 2. — P. 904–908.
10. Webman I., Jortner J., Cohen M. H. Critical exponents for percolation conductivity in resistor networks // Phys. Rev. B. — 1977. — Vol. 16, No. 6. — P. 2593–2596.
  11. Wilkinson D., Langer J. S., Sen P. N. Enhancement of the dielectric constant near a percolation threshold // Phys. Rev. B. — 1983. — 28, 2. — P. 1081–1087.
  12. Kyritsis A., Pissis P., Grammatikakis J. Dielectric relaxation spectroscopy in poly(hydroxyethyl acrylate) / water hydrogels // J. of Polymer Sci.: Part B: Polymer Physics. — 1995. — Vol. 33. — P. 1737–1750.
  13. Wintersgill M. C., Fontanella J. J. Polymer Electrolyte Reviews. — London, New York: Elsevier, 1989. — 243 p.
  14. Macedo P. B., Moynihan C. T., Bose R. The role of ionic diffusion in polarisation in vitreous ionic conductors // Phys. Chem. Glasses. — 1972. — Vol. 171, No. 13. — P. 172–180.
  15. Dyre J. C. Some remarks on ac conduction in disordered solids // J. Non-Cryst. Solids. — 1991. — Vol. 135, No. 2–3. — P. 219–226.
  16. Jonscher A. K. The «universal» dielectric response // Nature. — 1977. — Vol. 267. — P. 673–679.
  17. Chakrabarty R. K., Bardhan K. K., Basu A. Measurement of AC conductance, and minima in loss tangent, of random conductor-insulator mixtures // J. Phys.: Condens. Matter. — 1993. — Vol. 5. — P. 2377–2388.
  18. Wu J., Mc Lachlan D. S. Scaling behaviour of the complex conductivity of graphite-boron nitride systems // Phys. Rev. B. — 1998. — Vol. 58, No. 22. — P. 14880–14887.
  19. Achour M. E., Brosseau C., Carmona F. Dielectric relaxation in carbon black-epoxy composite materials // J. Appl. Phys. — 2008. — Vol. 103, No. 9. — P. 094103(1–10).

## LITERATURA

1. Eleckij A. V., Knizhnik A. A., Potapkin B. V., Kenni H. M. Elektricheskie harakteristiki polimernyh kompozitov, soderzhaschih uglerodnye nanotrubki // UFN. — 2015. — Vol. 185, No. 3. — P. 225–270.
2. Bauhofer W., Kovacs J. Z. A review and analysis of electrical percolation in carbon nanotube polymer composites // Composites

- Science and Technology. — 2009. — Vol. 69. — P. 1486–1498.
3. Dang Z. M., Zhang Y. H., Tjong S. C. Dependence of dielectric behavior on the physical property of fillers in the polymer-matrix composites // *Synth. Met.* — 2004. — Vol. 146. — P. 79–84.
  4. Wang L., Dang Z. -M. Carbon nanotube composites with high dielectric constant at low percolation threshold // *Appl. Phys. Lett.* — 2005. — Vol. 87. — P. 042903-1–042903-3.
  5. Tiwari D. C., Sen V., Sharma R. Temperature dependent studies of electric and dielectric properties of polythiophene based nano composite // *Indian Journal of Pure & Applied Physics.* — 2012. — Vol. 50. — P. 49–56.
  6. Stauffer D, Aharony A. Introduction to percolation theory. — London: Taylor and Francis, 1994. — 318 p.
  7. Gefen Y., Aharony A., Alexander S. Anomalous diffusion on percolating clusters // *Phys. Rev. Lett.* — 1983. — Vol. 50, No. 1. — P. 77–80.
  8. Bergman D. J., Imry Y. Critical Behavior of the Complex Dielectric Constant near the Percolation Threshold of a Heterogeneous Material // *Phys. Rev. Lett.* — 1977. — Vol. 39. — P. 1222–1225.
  9. Song Y., Noh T. W., Lee S. I., Gaines J. R. Experimental study of the three-dimensional AC conductivity and dielectric constant of a conductor-insulator composite near the percolation threshold // *Phys. Rev. B.* — 1986. — Vol. 33, No. 2. — P. 904–908.
  10. Webman I., Jortner J., Cohen M. H. Critical exponents for percolation conductivity in resistor networks // *Phys. Rev. B.* — 1977. — Vol. 16, No. 6. — P. 2593–2596.
  11. Wilkinson D., Langer J. S., Sen P. N. Enhancement of the dielectric constant near a percolation threshold // *Phys. Rev. B.* — 1983. — 28, 2. — P. 1081–1087.
  12. Kyritsis A., Pissis P., Grammatikakis J. Dielectric relaxation spectroscopy in poly(hydroxyethyl acrylate) / water hydrogels // *J. of Polymer Sci.: Part B: Polymer Physics.* — 1995. — Vol. 33. — P. 1737–1750.
  13. Wintersgill M. C., Fontanella J. J. *Polymer Electrolyte Reviews.* — London, New York: Elsevier, 1989. — 243 p.
  14. Macedo P. B., Moynihan C. T., Bose R. The role of ionic diffusion in polarisation in vitreous ionic conductors // *Phys. Chem. Glasses.* — 1972. — Vol. 171, No. 13. — P. 172–180.
  15. Dyre J. C. Some remarks on ac conduction in disordered solids // *J. Non-Cryst. Solids.* — 1991. — Vol. 135, No. 2–3. — P. 219–226.
  16. Jonscher A. K. The «universal» dielectric response // *Nature.* — 1977. — Vol. 267. — P. 673–679.
  17. Chakrabarty R. K., Bardhan K. K., Basu A. Measurement of AC conductance, and minima in loss tangent, of random conductor-insulator mixtures // *J. Phys.: Condens. Matter.* — 1993. — Vol. 5. — P. 2377–2388.
  18. Wu J., Mc Lachlan D. S. Scaling behaviour of the complex conductivity of graphite-boron nitride systems // *Phys. Rev. B.* — 1998. — Vol. 58, No. 22. — P. 14880–14887.
  19. Achour M. E., Brosseau C., Carmona F. Dielectric relaxation in carbon black-epoxy composite materials // *J. Appl. Phys.* — 2008. — Vol. 103, No. 9. — P. 094103(1–10).