



ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

Engineering

journal homepage: www.elsevier.com/locate/eng



Research
Metamaterials—Article

一种作为主动控制宽带吸波器的热可调超材料

邢校菡, 曹阳, 田小永*, 吴玲玲

State Key Laboratory for Manufacturing Systems Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China

ARTICLE INFO

Article history:

Received 28 September 2021

Revised 23 February 2022

Accepted 29 April 2022

Available online 12 November 2022

关键词

超材料
主动控制
热可调
宽带吸波

摘要

近年来,超材料因其操纵电磁波的强大能力而受到越来越多的关注。然而,大多数先前报道的超材料无法动态调控超宽带电磁波。在本文中,我们提出了一种使用具有不同相变温度的石蜡基复合材料(PD-Cs)来实现热可调谐宽带吸波的超材料结构体(T-TBM)。通过在不同相变温度下控制PD-Cs的固态,实现了从低频到高频的T-TBM反射损耗峰值的动态调控。T-TBM可以改变吸收峰值带宽(反射损耗值小于-30 dB),并且通过调整T-TBM的温度依然满足宽带吸波(反射损耗值小于-10 dB)。实验结果表明,T-TBM中PD-Cs的相变恒温效应为在不同热条件下主动控制电磁波吸收响应提供了时间窗口。该器件在电磁吸收、智能超材料、多功能结构器件等领域具有广阔的应用前景。

©2022 THE AUTHORS. Published by Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

1. 引言

超材料是一种通常包含周期性单元排列的人工结构,具有良好的电磁(EM)波调节能力和人工设计的特点[1-4],是近年来研究的热点。每个超材料单元的电磁响应可以通过控制超材料的几何结构或材料特性[5-8]来调整。因此,超材料在光路控制[9-11]、滤波[12-13]、完美透镜[14-15]等方面具有广泛的应用潜力[16-19]。特别地,在电磁波吸收领域,梯度超材料结构可以优化吸收器的阻抗,从而显著提高了后续的吸收效率[20]。

然而,一旦超材料吸收器被设计和制造出来,它的电磁响应通常就不能改变。因此,具有动态电磁响应特性的超材料器件(本文称为MDDEs)对于满足实际应用的要

求至关重要。通过在使用PIN二极管或可变电容二极管的电路中添加元件,可以有效地改变MDDE的电容或电感来改变谐振频率,从而实现基于电调节技术[21-24]的MDDE的吸收带宽的调整。然而,超材料的宽带吸收性能和实际应用都受到了窄谐振带和复杂的电子器件结构的限制。流体调谐技术是一种重要的解决方案,其介质主要包括蒸馏水和液态金属,已被用于实现宽带[25-27]的电磁波吸收。与电调节技术相比,通过仿真和优化可以显著提高有效吸收带宽(反射损耗值小于-10 dB,带宽大于20 GHz)。然而,大多数提出的设计通常表现出较低的调谐速度和需要刚性注入通道,这限制了它们的潜在应用。除此方法外,通过物理改变单元结构[28-29]可以有效地控制超材料的电磁响应,这种方法简单有效,但需要

* Corresponding author.

E-mail address: leoxyt@mail.xjtu.edu.cn (X.-Y. Tian).

复杂的制造过程。

热可调超材料可以替代上述调节方法，因其简单的结构操作和快速的控制速度[30–32]而引起了研究者的兴趣。例如，碲化锗 (GeTe) 在非晶态和晶态之间的切换可以通过热学方法来实现。Jeong 等[33]提出了一种基于 GeTe 材料的热法活性 MDDE。当 GeTe 的状态向晶态转移时，吸收峰下降到 9.6 GHz，相应的吸收值增加到 -0.36 dB。钛酸锶 (STO) 是另一种优良的热活性 MDDE 候选材料。Wang 等[34]设计了一种热频率可调的 MDDE，使用带有电共振环 (ERR) 的 STO，使它们彼此靠近，使波吸收频率随着温度的升高而向高频转移。然而，在这种情况下，高调节的转变温度和极窄的波吸收带宽 (小于 0.5 GHz) 远不符合实际应用的需求。

由于水在不同温度下的复介电常数不同，因此水在热可调微波吸收领域得到了广泛的应用。Shen 等[35]和 Pang 等[36]提出了一种基于水-基底结构的热可调超材料吸收体。其超材料吸收器的最大有效吸收带宽 (反射损耗值小于 -10 dB) 为 14.2 GHz (2.6~16.8 GHz)。通过控制超材料的环境温度，可以实现不同的电磁吸收响应。然而，由于水的介电常数随着频率的增加而急剧减小，Shen 等[35]和 Pang 等[36]提出的超材料吸收器不能获得更高的吸收率和更宽的吸收带，这限制了其吸收峰偏移的能力。

在这项工作中，我们提出了一种主动热可调宽带超材料 (T-TBM)，其特征是不仅具有传统梯度超材料的宽带吸波，而且其吸收响应可以被主动调节。具体来说，T-TBM 由光聚合物和石蜡基复合材料 (PD-Cs) 组成，其中由还原的氧化石墨烯 (RGO) @Fe₃O₄ 纳米复合材料和不同相变温度的石蜡组成。采用直接书写的方法，将不同相变温度的 PD-Cs 插入不同位置的光聚合物腔中，制备了 T-TBM。根据 PD-Cs 在石蜡相变前后的电磁特性的变化，可以调节 T-TBM 对电磁波的响应。在宽带吸波条件下，吸收器可以实现反射损耗峰值的主动偏移。更重要的是，我们证明，通过控制超材料单元中 PD-Cs 的固液态 (即控制 T-TBM 的温度)，吸收带宽 (反射损失值小于 -30 dB) 可以进一步加宽或变窄。所提出的超材料为灵活操纵吸收带宽范围提供了一种新的方法，它不再局限于窄带吸收。通过调整 T-TBM 的温度，吸收器可以在满足宽带吸波的同时实现 -30 dB 的吸收带偏移，这显然有利于电磁波调制器、热控制开关、热控制天线和智能温控系统等多功能应用。

2. 材料和准备

2.1. RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料的制备

采用机械方法制备 RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料，过程如下：将 5 g RGO (中国宜昌新城石墨有限公司) 和 20 g Fe₃O₄ (中国阿拉丁集团有限公司) 分别分散在 500 mL 和 200 mL 乙醇 (中国阿拉丁集团有限公司) 中 20 min；然后将分散的 Fe₃O₄ 醇溶液缓慢倒入 RGO 醇分散溶液中，搅拌 20 min；将分散的 RGO@Fe₃O₄ 纳米复合醇倒入真空过滤漏斗中，过滤 24 h；最后，将过滤后的 RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料置于 45 °C 的真空烤箱中放置 48 h。

2.2. PD-Cs 的制备

将固相变石蜡 (PC#38、PC#48、PC#58；中国广州中佳新材料技术有限公司) 置于烘箱中熔化至液体；将质量分数为 5% 的司盘-80 (国药化学试剂陕西有限公司) 滴入液相变石蜡中。将质量分数为 15% 的 RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料置于不同类型的液相变石蜡中，超声 30 min。

2.3. T-TBM 的制造

如图 1 (a) ~ (f) 所示，采用两步成型法制造尺寸为 200 mm×200 mm 的 T-TBM。首先，以耐高温光敏树脂 (中国陕西恒通智能机械有限公司) 为原料，采用立体光刻法制备了具有周期结构的超材料框架，如图 1 (a) 所示。值得注意的是，该光敏树脂的介电常数和电损耗角正切分别为 2.85 和 0.01，热软化温度为 91 °C。然后将超材料框架固定在加工平台上 [图 1 (b)]，通过直接写入的方法将不同相变温度下熔化的 PD-Cs 分别写入超材料框架中，如图 1 (c) ~ (e) 所示。需要强调的是，超材料的不同单元是用不同的相变温度下的 PD-Cs 直写的。最后，将成型的 T-TBM 从工作平台上移除 [图 1 (f)]。

3. 结果和讨论

3.1. RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料的表征

对 RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料的微观结构进行了表征。如图 2 (a) 和 (b) 所示，四氧化三铁纳米复合材料成功嵌入 RGO 层之间。该纳米复合材料具有纳米层状结构，促进了电磁波的多重反射和散射。用透射电子显微镜 (TEM) 测量了 RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料的形貌，如图 2 (c) 和 (d) 所示，图中清楚地揭示了四氧化三铁和 RGO 之间的界面。这种结构通过界面极化协助电磁波的衰减。

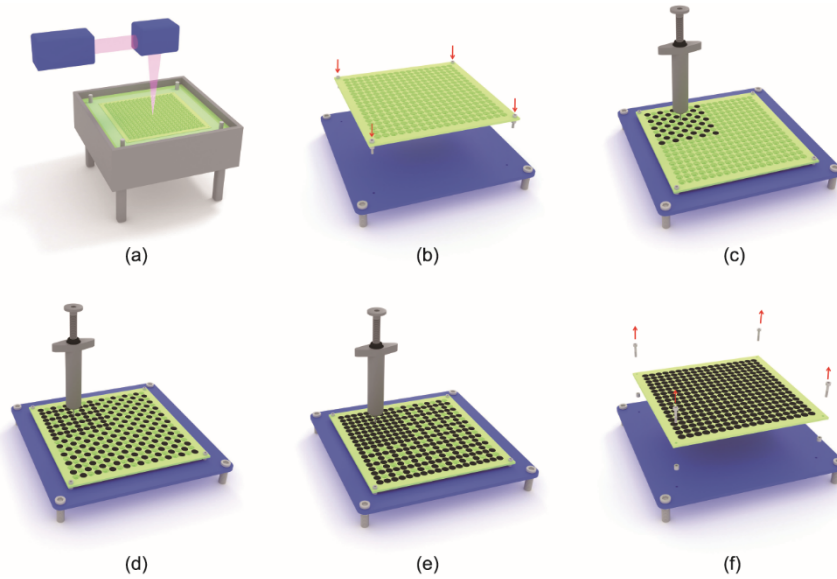


图1. (a) 用立体光刻技术制备超材料体；(b) 超材料体用螺栓固定在工作台上。(c) ~ (e) 相变温度为58 °C (c)、48 °C (d) 和38 °C (e) 的PD-Cs 分别通过直接书写的方式注入到超材料体内；(f) 制备好的T-TBM从工作台上卸载。

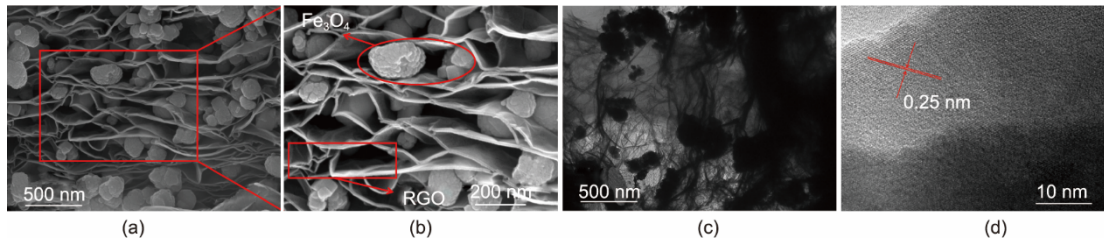


图2. (a)、(b) RGO@Fe₃O₄纳米复合材料的扫描电子显微镜 (SEM) 图像；(c) RGO@Fe₃O₄纳米复合材料的TEM图像；(d) RGO@Fe₃O₄纳米复合材料的高分辨率TEM图像。

3.2. PD-Cs 的性能

如图3所示，采用波导法测量了常温 (NAT, 25 °C) 下 PD-Cs 的电磁参数。根据相变温度差和图3所示的试验结果，将相变温度分别为38 °C、48 °C和58 °C的PD-Cs 分别命名为PCP#38、PCP#48 和PCP#58。当RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料的质量分数为15%时，不同相变温度下的PD-Cs 的电磁参数差异不大。此外，介电常数的实部 (ϵ') 和虚部 (ϵ'') 部分均随频率的增加而减少，而磁导率的实部 (μ') 和虚部 (μ'') 部分随频率的增加波动较小。然而，在整个频带内，PD-Cs 的电损耗角正切 ($\tan\delta$) 大于0.25，磁损耗切线 ($\tan\mu$) 小于0.2，说明电损耗是PD-Cs 的主要电磁波损耗。

采用差示扫描量热 (DSC) 方法检测了PD-Cs 和纯石蜡的相变行为。为方便起见，将相变温度分别为38 °C、48 °C和58 °C的纯石蜡命名为PC#38、PC#48 和PC#58。通过热分析实验，研究了0~70 °C之间的相变行为；所有的DSC加热/冷却数据均取自第二次扫描结果，以确保数据的准确性和可靠性。如图4所示，负热流表明纯石蜡的

熔化为吸热，而正热流表明其凝固为放热。值得注意的是，PD-Cs 和石蜡的熔点和凝固点几乎没有变化。基于以上结果，研究石蜡在反复熔化和凝固循环过程中的热稳定性具有重要意义。虽然RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料的加入降低了石蜡的潜热 (被曲线和横坐标包围的面积)，但它并没有显著改变PD-Cs 的相变温度。这些发现为通过改变PD-Cs 的固液态来控制超材料的电磁响应提供了新的思路。

利用同轴探针技术[17]检测PD-Cs 在液体状态下的复合介电常数，测试组件如图5 (a) 所示。与固态的PD-Cs 相似，根据不同的相变温度，液态的PD-Cs 被定义为L-PCP#38、L-PCP#48 和L-PCP#58。如图5 (b) ~ (d) 所示，与具有复杂介电常数的固体相比，PD-Cs 液态介电常数的实部和虚部显著下降，主要是由于RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料PD-Cs 在液态和固态时的微观形态的变化。需要注意的是，PD-Cs 在液态的电损耗角正切低于PD-Cs 的固态，这表明RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料的形态变化导致PD-Cs 的电损耗性能下降。

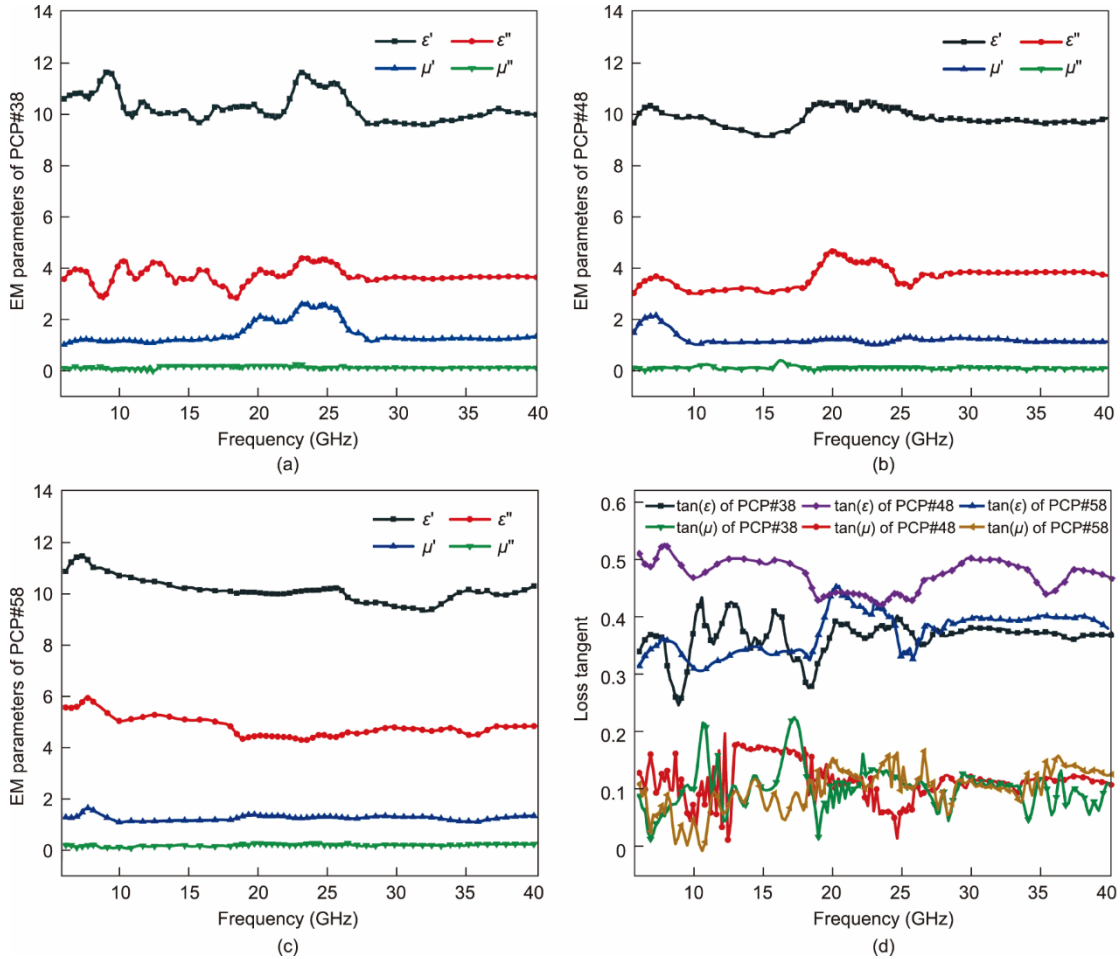


图3. PCP#38、PCP#48和PCP#58的EM参数。PCP#38 (a)、PCP#48 (b)和PCP#58 (c)的复合介电常数和复磁导率 (ϵ' 和 ϵ'' 分别为介电常数的实部和虚部; μ' 和 μ'' 分别为磁导率的实部和虚部)。(d)不同PD-Cs的电损耗角正切 ($\tan\epsilon$)和磁损耗角正切 ($\tan\mu$)。

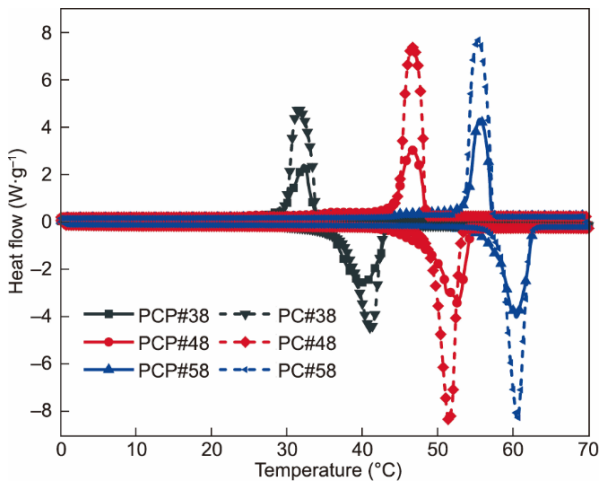


图4. PD-Cs (PCP#38、PCP#48和PCP#58)和纯石蜡 (PC#38、PC#48和PC#58)的DSC曲线, PCP#38、PCP#48、PCP#58、PC#38、PC#48和PC#58的熔点分别为39.82 °C、51.88 °C、59.30 °C、39.37 °C、50.26 °C和59.13 °C, 凝固点分别为32.91 °C、47.68 °C、56.22 °C、32.37 °C、47.37 °C和56.15 °C。

3.3. T-TBM的实验和仿真结果

为了验证T-TBM的宽带吸波和主动控制特性,我们

测量了T-TBM在不同温度下的EM吸收特性,并使用ANSYS HFSS 16.0模拟了T-TBM在NAT条件下的EM吸收特性(图6)。在微波暗室中测量了反射损耗[图6 (a)]。为了控制吸收器的温度,在T-TBM下放置了一个加热模块[图6 (c)]。图6 (b)描述了T-TBM超材料单元的几何尺寸。T-TBM单元的尺寸由ANSYS HFSS 16.0的仿真结果得到。值得注意的是,超材料单元的几何尺寸可以通过ANSYS HFSS 16.0的优化函数得到最终优化的结构尺寸。为了确保T-TBM与加热模块中的反射性金属板之间的紧密接触,我们使用了聚碳酸酯螺栓将T-TBM固定在加热板上。需要注意的是,T-TBM是一种具有半开放结构的吸收体,其它不仅可以使制备方便,而且有利于改善结构的阻抗匹配。

3.3.1. T-TBM在NAT条件下的吸收性能

NAT反射损耗的模拟和实验结果如图7所示。结果表明,当PD-Cs处于NAT(固态)时,T-TBM在6-40 GHz的反射损耗值低于-10 dB。有效吸收带宽为34 kHz,

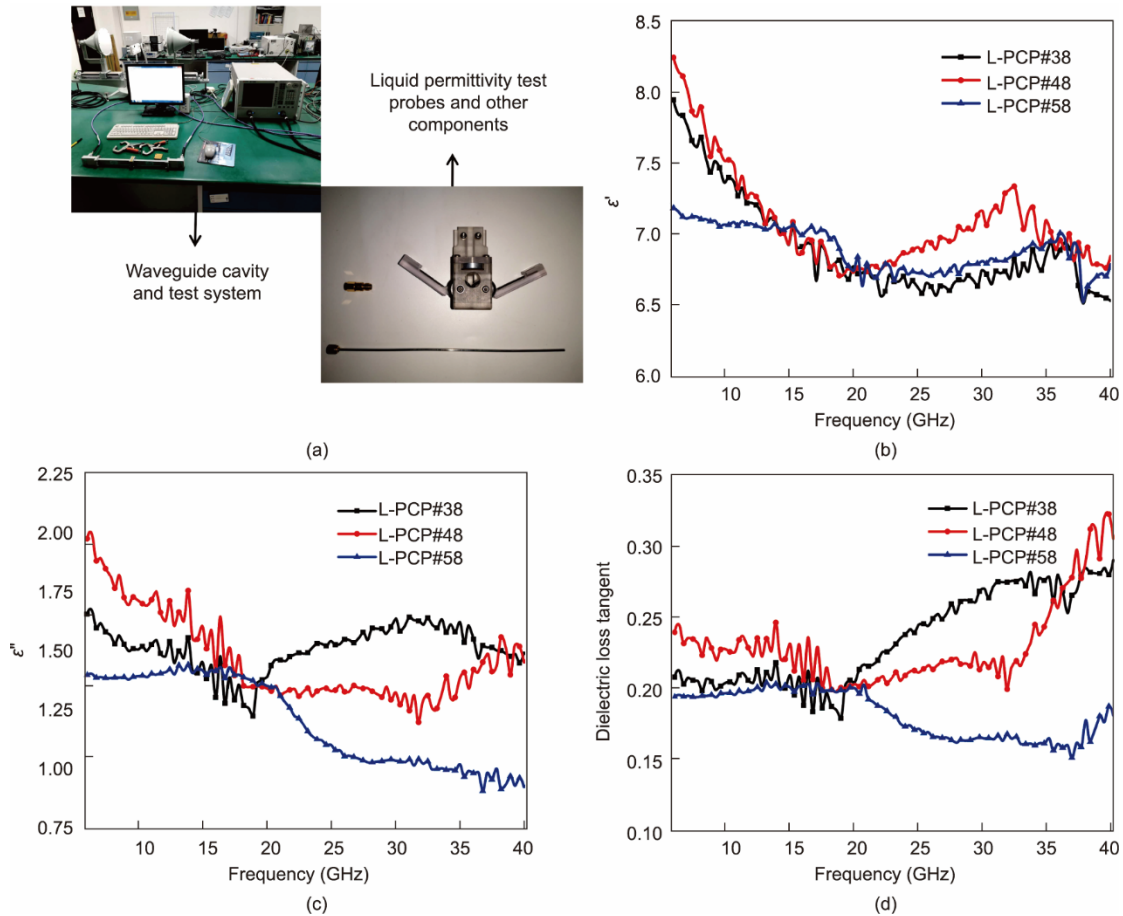


图5. (a) 左上图显示了使用波导测试的固态下的PD-Cs; 右下图显示了用于测量液态下PD-Cs介电常数的安捷伦探针测试设备。(b) ~ (d) L-PCP#38、L-PCP#48和L-PCP#58的EM参数: (b) 介电常数的实部 (ϵ'); (c) 介电常数的虚部 (ϵ''); (d) 电损耗角正切 (ϵ''/ϵ')。

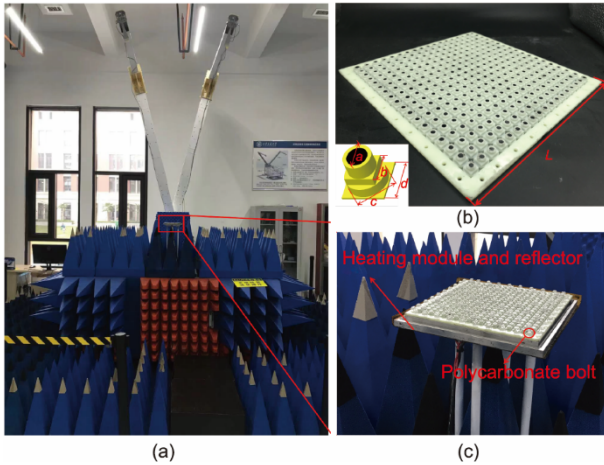


图6. (a) 在微波暗室中的T-TBM的实验装置; (b) T-TBM, 厚度为7.2 mm, 插图显示单元尺寸, 其中, $a = 6.1$ mm, $b = 7.3$ mm, $c = 9.5$ mm, $d = 10$ mm, $L = 200$ mm; (c) 加热模块和T-TBM。

-30 dB 时的带宽为 4.4 GHz (14.1~15.9 GHz, 19.9~22.5 GHz)。T-TBM 具有宽带吸波特性的。聚碳酸酯螺栓和非结构化边缘区域是模拟和测量结果之间差异的主要来源。这主要是由于聚碳酸酯螺栓改变了 T-TBM 的结构。然而, 模

拟无法准确预测这种变化。同样, T-TBM 的边缘区域是一个非结构区域, 不符合无限周期超材料的模拟要求。模拟了不同相变温度下 PD-Cs 的反射损耗。为确保对比的可信度, 模拟的 PD-Cs 单层厚度与 T-TBM 相同。由 PCP#38、PCP#48 或 PCP#58 组成的单层涂层仅在 24.8 GHz、7.6 GHz 或 8.1 GHz 处分别显示出谐振峰值 (图 7)。然而, 在 6~40 GHz 范围内, 反射损耗达不到 -10 dB。比较结果表明, 与 T-TBM 的宽带吸波相比, 非结构 PD-Cs 的吸收性能并不理想。因此, 所提出的分级超材料结构具有制造宽带吸波器的潜力。

为了研究 T-TBM 在 NAT 条件下的微波吸收机制, 我们确定了用 ANSYS HFSS 16.0 模拟的电场强度、磁场强度和体损耗密度, 如图 8 所示。在 12.5 GHz 的频率下, 电场似乎被困在超材料单元的底部, 而磁场则反射在超材料单元的中间和底部。可以看出, 磁场和电场的集中区域在超材料单元的中间有重叠。由此可以得出结论, 磁损耗和电损耗都导致磁场和电场的分布区域重叠以及功率损耗重叠。当频率为 17.6 GHz 时, 电场和磁场分别位于超材料

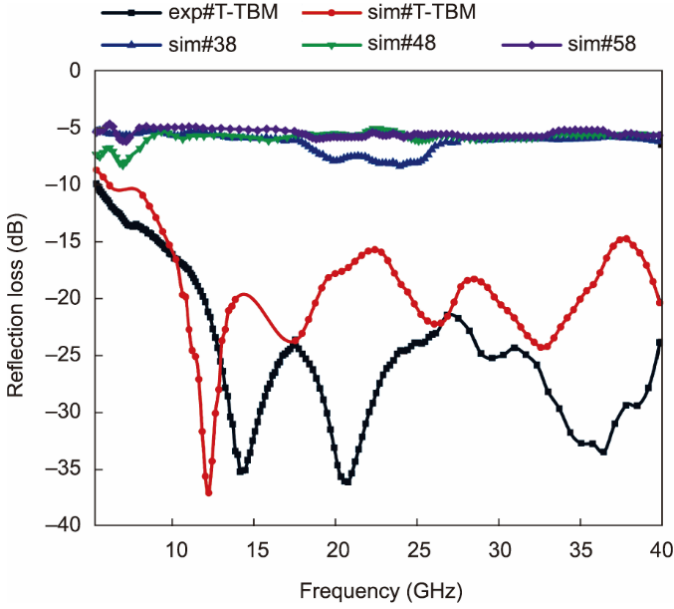


图 7. T-TBM 和由 PCP#38、PCP#48 或 PCP#58 组成的单层涂层（固态）在 6~40 GHz 的 NAT 条件下的测量和模拟吸收特性。exp#T-TBM 是 T-TBM 的反射损耗实验曲线；sim#T-TBM 是 T-TBM 的反射损耗模拟曲线；sim#38、sim#48 和 sim#58 分别代表 PCP#38、PCP#48 和 PCP#58 单层涂层的反射损耗模拟曲线。

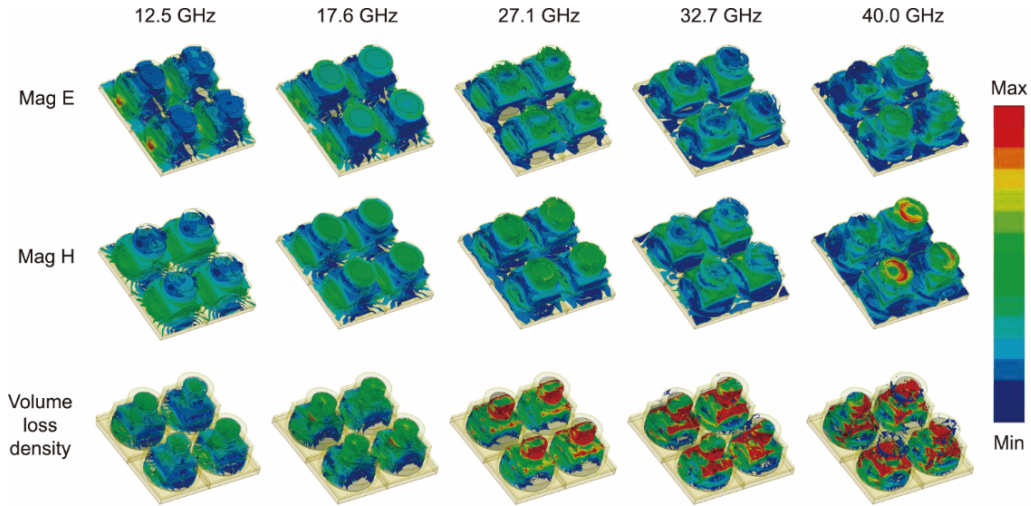


图 8. T-TBM 单元的电场强度 (Mag E)、磁场强度 (Mag H) 和体损耗密度 (volume loss density)。

$${}^n\alpha^{\text{eff}} = \frac{\sqrt{2}\pi f}{c} \left\{ \left({}^n\mu''_{\text{eff}} \cdot {}^n\varepsilon'_{\text{eff}} - {}^n\mu'_{\text{eff}} \cdot {}^n\varepsilon''_{\text{eff}} \right) + \left({}^n\mu''_{\text{eff}} \cdot {}^n\varepsilon'_{\text{eff}} - {}^n\mu'_{\text{eff}} \cdot {}^n\varepsilon''_{\text{eff}} \right)^2 + \left({}^n\mu'_{\text{eff}} \cdot {}^n\varepsilon''_{\text{eff}} - {}^n\mu''_{\text{eff}} \cdot {}^n\varepsilon'_{\text{eff}} \right) \right\}^{1/2} \quad (2)$$

$${}^nZ_{\text{in}}^{\text{eff}} = {}^nZ \frac{{}^{n-1}Z_{\text{in}}^{\text{eff}} + {}^nZ \cdot \tanh({}^n\gamma \cdot {}^nd)}{{}^nZ + {}^nZ_{\text{in}}^{\text{eff}} \cdot \tanh({}^n\gamma \cdot {}^nd)} \quad (3)$$

$${}^nZ = Z_0 \sqrt{\frac{{}^n\mu_{\text{reff}}}{{}^n\varepsilon_{\text{reff}}}}, \quad {}^n\gamma = j2\pi f \frac{\sqrt{{}^n\mu_{\text{reff}} \cdot {}^n\varepsilon_{\text{reff}}}}{c} \quad (4)$$

式中, $Z_0 = 377$ 表示自由空间阻抗; ${}^nZ_{\text{in}}^{\text{eff}}$ 表示 T-TBM 第 n 层的输入阻抗; ${}^n\varepsilon_{\text{reff}}$ 和 ${}^n\mu_{\text{reff}}$ 分别表示第 n 层的等效介电常

单元的顶部和底部。当频率为 27.1 GHz 时, 电场和磁场仍然分布在 T-TBM 的顶部和底部。此外, 在 27.1 GHz 时, 电场和磁场的分布面积大于在 17.6 GHz 时。在 27.1 GHz 时, 电场分布区域发生重叠, 功率损耗发生重叠, 说明主要的波损耗为电损耗。在 32.7 GHz 时, 电场和磁场集中在 T-TBM 的中间。相比之下, 在 40 GHz 时, T-TBM 顶部的磁场明显增强, 说明 T-TBM 顶部的波损耗主要是由高频磁场引起的。仿真结果表明, 在吸收波损耗方面, 电损耗是主要来源, 而在高频时磁损耗更为明显。

为了研究 T-TBM 的吸收特性, 我们采用 S 参数反演方法计算了每个 T-TBM 等效层的等效 EM 参数[详细的分层见图 9 (a)]。利用传输线理论将 T-TBM 的多层输入阻抗转换为单层吸收器输入阻抗, 如图 9 (a) 所示。 ${}^nZ_{\text{in}}^{\text{eff}}$ 和 ${}^n\alpha^{\text{eff}}$ 分别采用公式 (1) 和公式 (2) 进行计算[37-38]。T-TBM 的等效单层输入阻抗 (${}^nZ_{\text{in}}^{\text{eff}}$) 采用公式 (3) 和公式 (4) 进行计算, 其中 n 代表第 n 层。

$${}^nZ_{\text{in}}^{\text{eff}} = Z_0 \left(\frac{{}^n\mu_{\text{reff}}}{{}^n\varepsilon_{\text{reff}}} \right)^{1/2} \tanh \left[\frac{j2\pi f \cdot {}^nd}{c} \cdot \left({}^n\mu_{\text{reff}} \cdot {}^n\varepsilon_{\text{reff}} \right)^{1/2} \right] \quad (1)$$

数和磁导率; ${}^n\alpha^{\text{eff}}$ 表示第 n 层的衰减常数; ${}^n\varepsilon'_{\text{eff}}$ 和 ${}^n\varepsilon''_{\text{eff}}$ 分别表示第 n 层等效介电常数的实部和虚部; ${}^n\mu'_{\text{eff}}$ 和 ${}^n\mu''_{\text{eff}}$ 分别表示第 n 层等效磁导率的实部和虚部; c 表示电磁波在自由空间中的速度; f 表示微波的频率; nd 表示 T-TBM 第 n 层的厚度; nZ 为第 n 层的特征阻抗; ${}^n\gamma$ 为第 n 层的传播常数。 ${}^n\alpha^{\text{eff}}$ 、 ${}^nZ_{\text{in}}^{\text{eff}}$ 和 $Z_{\text{in}}^{\text{eff}}$ 的数据图如图 9 (b) 所示。

如图 9 (b) 所示, T-TBM 每一层的衰减常数随着电磁频率的增加而显著增加。这表明, T-TBM 的每一层在高频频段的吸收能力比在低频频段的吸收能力有所提高, 这与模拟结果一致。这种改进的主要原因是 RGO 中存在

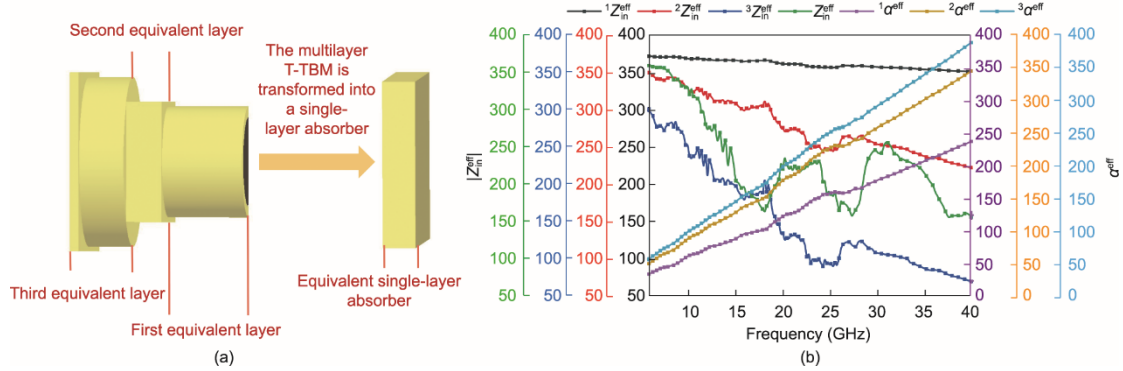


图9. (a) T-TBM分为三层：第一等效层 ($n=1$)、第二等效层 ($n=2$) 和第三等效层 ($n=3$)；(b) $^1Z_{in}^{eff}$ 是T-TBM第一等效层的输入阻抗， $^2Z_{in}^{eff}$ 是T-TBM第二等效层的输入阻抗， $^3Z_{in}^{eff}$ 是T-TBM第三等效层的输入阻抗， Z_{in}^{eff} 是T-TBM等效单层的输入阻抗， $^1\alpha^{eff}$ 是T-TBM第一等效层的衰减常数， $^2\alpha^{eff}$ 是T-TBM第二等效层的衰减常数， $^3\alpha^{eff}$ 是T-TBM第三等效层的衰减常数。

π 键和碳-碳键缺陷，当吸收器以电阻损失和偏振弛豫的形式接收电磁波时，它们将电磁能量转化为热能。此外，由四氧化三铁与RGO之间的界面极化和四氧化三铁磁滞共振引起的电磁波的吸收现象也是造成波损失[39]的一个重要原因。与衰减常数相比，T-TBM每一层的输入阻抗随着频率的增加而减小，这主要是由于频率增加引起波阻抗的减小。值得注意的是，随着层数的增加，T-TBM的输入阻抗逐渐减小，衰减常数逐渐增大，有利于电磁波进入T-TBM，并发生衰减和丢失。

为了解释T-TBM的吸收原理，我们测定了T-TBM的等效单层输入阻抗 (Z_{in}^{eff})，如图9 (b) 所示。可见，T-TBM在低频频段具有良好的阻抗匹配；然而由于T-TBM的微波吸收性能较差，因此其低衰减损耗能力不足。随着T-TBM在中频段内的衰减性能的提高，阻抗匹配变得特别关键，因为它决定了进入T-TBM内部的电磁波的数量。根据实验结果，我们发现T-TBM在17.6 GHz和27.3 GHz处具有较低的输入阻抗；与其他频率相比，这些频率的阻抗匹配最差，即图7中 $\exp\#$ -T-TBM对应频率点的反射损耗值较高。虽然高频频段的阻抗匹配较差，但其高衰减能力使T-TBM具有较好的吸收损耗性能。

通过与理论Rozanov极限[40]的比较，可以评估超材料结构在厚度方向上的优化程度。Rozanov界的公式如下：

$$|\ln \rho_0| \cdot (\lambda_{max} - \lambda_{min}) \leq 2\pi^2 \sum_n^n \mu_s^{eff} \cdot n d \quad (5)$$

式中， ρ_0 为工作波长带内的最大反射 [λ_{min} , λ_{max}]； $^n \mu_s^{eff}$ 和 $n d$ 分别表示 n 层的等效磁导率和 n 层的厚度。计算结果表明，不等式的右值 (0.18) 大于不等式的左值 (0.098)，说明在厚度方向上，T-TBM在理论上可以继续优化。然而，不可否认的是，厚度方向的尺寸减小使得电磁波对T-TBM的其他两个方向的尺寸精度更加敏感，这对T-

TBM的制造提出了挑战。

3.3.2. T-TBM在不同热条件下的调优性能

T-TBM在不同温度下的吸收响应与在NAT时一样好。此外，T-TBM在不同热条件下的吸收响应性能的规律性变化使主动调节T-TBM的吸收成为可能。首先，通过红外观测测量了T-TBM的热响应 (附录A中的视频S1)。如图10所示，当温度上升到PD-Cs相应的相变温度时，PD-Cs表现出恒温特性[41]，这主要是由于石蜡的相变为电磁波的吸收调节提供了一个时间窗。

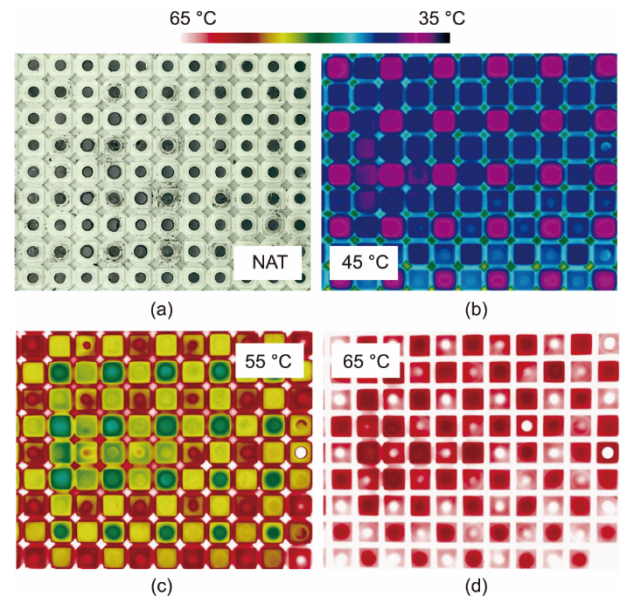


图10. 不同温度下T-TBM的中间区域的红外观测。(a) NAT；(b) 45 °C；(c) 55 °C；(d) 65 °C。

T-TBM在不同环境温度下的反射损失如图11所示。与T-TBM在NAT条件下的宽带吸波性能不同，T-TBM在不同温度下的吸收响应表现出其可调谐的特性。当PD-Cs处于环境温度为45 °C时，PCP#38处于液态，而PCP#48

和PCP#58处于固态。当频率在7.3~40.0 GHz范围内时，T-TBM可实现小于-10 dB的反射损耗，其有效吸收带宽为32.7 GHz。-30 dB的带宽为2.7 GHz（17.6~18.4 GHz，23.1~25.0 GHz）。当PD-Cs处于环境温度为55 °C时，PCP#38和PCP#48处于液态，而PCP#58处于固态。T-TBM的有效吸收带宽（-10 dB）为32.4 GHz（7.6~40.0 GHz），-30 dB的带宽为3.7 GHz（30.1~33.8 GHz）。当PD-Cs处于环境温度为65 °C时，PCP#38、PCP#48和PCP#58都处于液态。当频率范围为8.2~40.0 GHz时，T-TBM可以实现小于-10 dB的反射损耗。-30 dB的带宽为5.8 GHz（27.6~33.4 GHz）。

随着PD-Cs固液态的变化，T-TBM的吸收峰和吸收带宽（-30 dB）开始发生变化，但T-TBM保留了宽带吸波的特性。T-TBM的电磁响应的变化与其损耗性能密切相关。具体来说，随着T-TBM温度的升高，吸收峰逐渐向一个高值移动，吸收带宽（-30 dB）变宽，并向高频方向偏移。在低频（6~15 GHz）条件下，随着T-TBM温度的升高，T-TBM的反射损耗值增加，T-TBM的微波吸收性能降低。这主要是因为PD-Cs在低频固态条件下具有良好的电损耗性能。温度的升高对PD-Cs中导电网络造成破坏，导致T-TBM的微波吸收性能下降。这也表明，在该频带内，超材料的电阻损失占主导地位。在高频（15~40 GHz）段，随着频率的增加，超材料的反射损耗小于-15 dB，说明PD-Cs的弛豫损耗和界面损耗成为主要的损耗源。

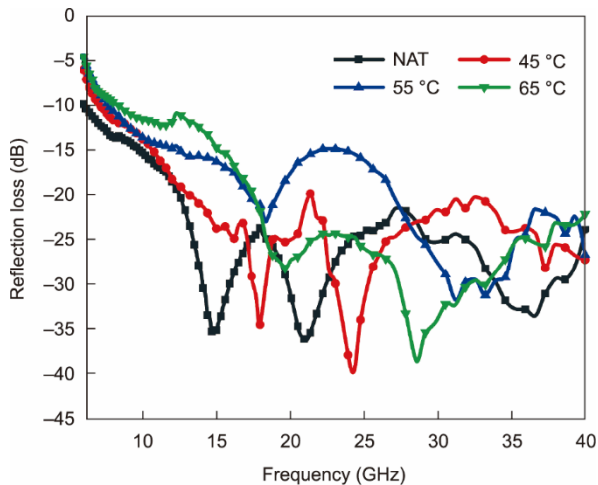


图 11. T-TBM 在不同温度下的反射损失。

为了解释 T-TBM 的热控制机制，我们分析了 PD-Cs 的微观结构。首先，采用低温透射电镜技术对 PD-Cs 的薄片进行了分析。如图 12 所示，RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料均匀分布在 PD-Cs 中，形成了一个复杂的导电网络。导电

网络的形成不仅导致了电磁波的弛豫极化和多层散射的损失，而且降低了电阻加热导致的吸收。

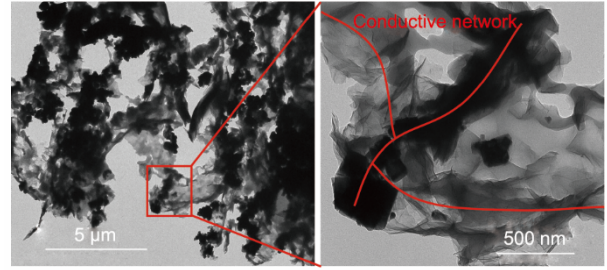


图 12. PD-Cs 的冷冻 TEM 图像，其中 PD-Cs 薄片的厚度为 500 nm。

然而，随着 PD-Cs 的逐渐熔化，由 RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料构建的导电网络被破坏，导致 PD-Cs 的吸波性能发生变化，如图 13 所示。具体来说，PD-Cs 的介电常数的实部和虚部显著降低（图 4），导致 PD-Cs 的电导率[12]降低。石蜡聚合物的分子链为固态时处于收缩状态，有利于 RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料在石蜡中的致密分布，从而促进了导电网络和夹层结构的形成。这种情况导致了固态 PD-Cs 的介电常数的高实部和虚部。然而，随着分子链的膨胀和液体石蜡分子之间距离的增加，RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料在石蜡中的分布变得松散而不是致密。RGO@Fe₃O₄ 纳米复合材料构建的导电网络的破坏导致 PD-Cs 的电磁波损耗性能下降，表现为 PD-Cs 复合介电常数的降低。这会导致 T-TBM 损失性能的下降。这些微观结构的变化使调节电磁吸收特性成为可能。

4. 结论

综上所述，我们提出了一种 T-TBM 器件，它可以通过控制不同超材料单元的固-液相状态来调节 T-TBM 的电磁响应。与之前报道的主动控制超材料不同，T-TBM 的吸收响应是由不同 PD-Cs 在固液状态下的电镜特性差异调节的。根据 T-TBM 结构的优化设计，在 NAT 条件下，有效吸收带宽（-10 dB）为 34 GHz（6~40 GHz），吸收带宽（-30 dB）为 4.4 GHz（14.1~15.9 GHz，19.9~22.5 GHz）。通过分析电场、磁场和功率损耗密度的模拟结果，我们演示了 T-TBM 中的微波吸收机理，并讨论了 PD-Cs 中微观结构的微波吸收机理。利用不同固液状态下 PD-Cs 的电磁参数的差异来调节 T-TBM 的电磁波吸收响应。实验结果表明，随着石蜡基体复合材料相态的变化，反射损耗的吸收峰和吸收带宽（-30 dB）向较高频率的方向偏移，吸收带宽（-30 dB）变宽。与传统的主动控制超材料相比，T-

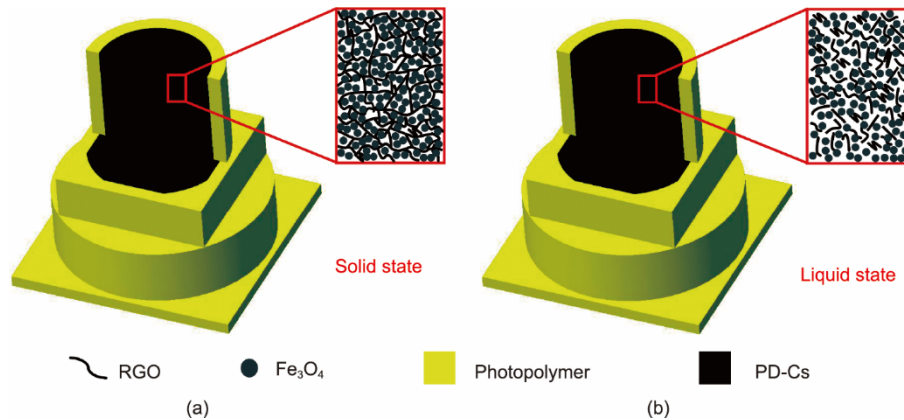


图13. 不同相态下T-TBM单元中PD-Cs的微观结构。(a) 固态下的PD-Cs; (b) 液态下的PD-Cs。

TBM不仅具有更宽的吸收带，而且具有更方便的吸收调节方法。预测通过改变T-TBM的结构可以任意调整吸收带。本工作可以进一步促进智能超材料和热控制吸收器的发展。

致谢

本研究由国家自然科学基金项目(52003203和52075422)、陕西省快速制造工程技术研究中心(2017HB-GC-06)、陕西高校青年创新团队、K.C. Wong教育基金资助。

Compliance with ethics guidelines

Xiao-Chang Xing, Yang Cao, Xiao-Yong Tian, and Lingling Wu declare that they have no conflict of interest or financial conflicts to disclose.

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.eng.2022.04.028>.

References

- [1] Pendry JB, Schurig D, Smith DR. Controlling electromagnetic fields. *Science* 2006;312(5781):1780–2.
- [2] Zheludev NI, Kivshar YS. From metamaterials to metadevices. *Nat Mater* 2012; 11(11):917–24.
- [3] Edwards B, Alù A, Silveirinha MG, Engheta N. Experimental verification of plasmonic cloaking at microwave frequencies with metamaterials. *Phys Rev Lett* 2009;103(15):153901.
- [4] Cui TJ. Microwave metamaterials. *Natl Sci Rev* 2018;5(2):134–6.
- [5] Díaz-Rubio A, Asadchy VS, Elsakka A, Tretyakov SA. From the generalized reflection law to the realization of perfect anomalous reflectors. *Sci Adv* 2017; 3(8):e1602714.
- [6] Liu L, Zhang X, Kenney M, Su X, Xu N, Ouyang C, et al. Broadband metasurfaces with simultaneous control of phase and amplitude. *Adv Mater* 2014;26(29):5031–6.
- [7] Grady NK, Heyes JE, Chowdhury DR, Zeng Y, Reiten MT, Azad AK, et al. Terahertz metamaterials for linear polarization conversion and anomalous refraction. *Science* 2013;340(6138):1304–7.
- [8] Pfeiffer C, Grbic A. Metamaterial Huygens' surfaces: tailoring wave fronts with reflectionless sheets. *Phys Rev Lett* 2013;110(19):197401.
- [9] Zhang X, Tian Z, Yue W, Gu J, Zhang S, Han J, et al. Broadband terahertz wave deflection based on C-shape complex metamaterials with phase discontinuities. *Adv Mater* 2013;25(33):4567–72.
- [10] Huang L, Chen X, Mühlender H, Li G, Bai B, Tan Q, et al. Dispersionless phase discontinuities for controlling light propagation. *Nano Lett* 2012;12(11): 5750–5.
- [11] Arbabi A, Arbabi E, Horie Y, Kamali SM, Faraon A. Planar metasurface retroreflector. *Nat Photonics* 2017;11(7):415–20.
- [12] Lin Z, Xu Z, Liu P, Liang Z, Lin YS. Polarization-sensitive terahertz resonator using asymmetrical F-shaped metamaterial. *Opt Laser Technol* 2020;121:105826.
- [13] Yao D, Yan K, Liu X, Liao S, Yu Y, Lin YS. Tunable terahertz metamaterial by using asymmetrical double split-ring resonators (ADSRRs). *OSA Contin* 2018; 1(2):349–57.
- [14] Yin M, Tian XY, Han HX, Li DC. Free-space carpet-cloak based on gradient index photonic crystals in metamaterial regime. *Appl Phys Lett* 2012;100(12): 124101.
- [15] Han H, Wu L, Tian X, Li D, Yin M, Wang Y. Broadband gradient refractive index planar lens based on a compound liquid medium. *J Appl Phys* 2012; 112(11):114913.
- [16] Lv H, Tian X, Wang MY, Li D. Vibration energy harvesting using a phononic crystal with point defect states. *Appl Phys Lett* 2013;102(3):034103.
- [17] Feng M, Tian X, Wang J, Yin M, Qu S, Li D. Broadband abnormal reflection based on a metal-backed gradient index liquid slab: an alternative to metasurfaces. *J Phys D Appl Phys* 2015;48(24):245501.
- [18] Guo S, Hu C, Zhang H. Unidirectional ultrabroadband and wide-angle absorption in graphene-embedded photonic crystals with the cascading structure comprising the Octonacci sequence. *J Opt Soc Am B* 2020;37(9):2678–87.
- [19] Zhang HF, Zhang H, Yao Y, Yang J, Liu JX. A band enhanced plasma metamaterial absorber based on triangular ring-shaped resonators. *IEEE Photonics J* 2018;10(4):1–10.
- [20] Yin L, Doyhamboure-Fouquet J, Tian X, Li D. Design and characterization of radar absorbing structure based on gradient-refractive-index metamaterials. *Compos Part B* 2018;132:178–87.
- [21] Tao Z, Wan X, Pan BC, Cui TJ. Reconfigurable conversions of reflection, transmission, and polarization states using active metasurface. *Appl Phys Lett* 2017;110(12):121901.
- [22] Liberal I, Li Y, Engheta N. Reconfigurable epsilon-near-zero metasurfaces via photonic doping. *Nanophotonics* 2018;7(6):1117–27.
- [23] Yao Y, Shankar R, Kats MA, Song Y, Kong J, Loncar M, et al. Electrically tunable metasurface perfect absorbers for ultrathin mid-infrared optical modulators. *Nano Lett* 2014;14(11):6526–32.
- [24] Hu N, Zhang J, Zha S, Liu C, Liu H, Liu P. Design of a multilayer broadband

- switchable absorber based on semiconductor switch. *IEEE Antennas Wirel Propag Lett* 2019;18(2):373–7.
- [25] Wu Z, Chen X, Zhang Z, Heng L, Wang S, Zou Y. Design and optimization of a flexible water-based microwave absorbing metamaterial. *Appl Phys Express* 2019;12(5):057003.
- [26] Jeong H, Lim S. Broadband frequency-reconfigurable metamaterial absorber using switchable ground plane. *Sci Rep* 2018;8(1):9226.
- [27] Xing X, Tian X, Jia X, Li D. Reconfigurable liquid electromagnetic metamaterials driven by magnetic fields. *Appl Phys Express* 2021;14(4):041002.
- [28] Liu X, Padilla WJ. Dynamic manipulation of infrared radiation with MEMS metamaterials. *Adv Opt Mater* 2013;1(8):559–62.
- [29] Liu M, Susli M, Silva D, Putrino G, Kala H, Fan S, et al. Ultrathin tunable terahertz absorber based on MEMS-driven metamaterial. *Microsyst Nanoeng* 2017;3:17033.
- [30] Long L, Taylor S, Ying X, Wang L. Thermally-switchable spectrally-selective infrared metamaterial absorber/emitter by tuning magnetic polariton with a phase-change VO₂ layer. *Mater Today Energy* 2019;13:214–20.
- [31] Ding F, Zhong S, Bozhevolnyi SI. Vanadium dioxide integrated metasurfaces with switchable functionalities at terahertz frequencies. *Adv Opt Mater* 2018; 6(9):1701204.
- [32] Komar A, Paniagua-Domínguez R, Miroshnichenko A, Yu YF, Kivshar YS, Kuznetsov AI, et al. Dynamic beam switching by liquid crystal tunable dielectric metasurfaces. *ACS Photonics* 2018;5(5):1742–8.
- [33] Jeong H, Park JH, Moon YH, Baek CW, Lim S. Thermal frequency reconfigurable electromagnetic absorber using phase change material. *Sensors* 2018;18(10):3506.
- [34] Wang L, Xia D, Fu Q, Wang Y, Ding X, Yang B. Thermally tunable ultra-thin metamaterial absorber at P band. *J Electromagn Waves Appl* 2019;33(11):1406–15.
- [35] Shen Y, Zhang J, Pang Y, Zheng L, Wang J, Ma H, et al. Thermally tunable ultrawideband metamaterial absorbers based on three-dimensional watersubstrate construction. *Sci Rep* 2018;8(1):4423.
- [36] Pang Y, Wang J, Cheng Q, Xia S, Zhou XY, Xu Z, et al. Thermally tunable watersubstrate broadband metamaterial absorbers. *Appl Phys Lett* 2017;110(10): 104103.
- [37] Wu F, Xia Y, Sun M, Xie A. Two-dimensional (2D) few-layers WS₂ nanosheets: an ideal nanomaterials with tunable electromagnetic absorption performance. *Appl Phys Lett* 2018;113(5):052906.
- [38] Liu W, Tan S, Yang Z, Ji G. Hollow graphite spheres embedded in porous amorphous carbon matrices as lightweight and low-frequency microwave absorbing material through modulating dielectric loss. *Carbon* 2018;138:143–53.
- [39] Wang XX, Shu JC, Cao WQ, Zhang M, Yuan J, Cao MS. Eco-mimetic nanoarchitecture for green EMI shielding. *Chem Eng J* 2019;369:1068–77.
- [40] Rozanov KN. Ultimate thickness to bandwidth ratio of radar absorbers. *IEEE Trans Antenn Propag* 2000;48(8):1230–4.
- [41] Jia X, Li Q, Ao C, Hu R, Xia T, Xue Z, et al. High thermal conductive shape-stabilized phase change materials of polyethylene glycol/boron nitride@chitosan composites for thermal energy storage. *Compos Part A* 2020; 129:105710.