

ДИНАМИЧЕСКАЯ МАГНИТНАЯ ПРОНИЦАЕМОСТЬ ГЕТЕРОГЕННЫХ НАНОСИСТЕМ НА ОСНОВЕ КОМПОЗИТОВ (Co₄₁Fe₃₉B₂₀)_x(SiO₂)_{100-x}

А. Б. Грановский^{a,b*}, Ю. Е. Калинин^{c**}, М. А. Каширин^c,
Д. В. Колмаков^c, В. В. Рыльков^{b,d}, А. В. Ситников^c,
С. А. Вызулин^e, Е. А. Ганьшина^a, А. Н. Талденков^d

^a Физический факультет, Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119991, Москва, Россия

^b Институт теоретической и прикладной электродинамики Российской академии наук
127412, Москва, Россия

^c Воронежский государственный технический университет
394026, Воронеж, Россия

^d Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия

^e Краснодарское высшее военное училище им. С. М. Штеменко
350035, Краснодар, Россия

Поступила в редакцию 19 января 2017 г.

Методом ионно-лучевого напыления получены тонкие пленки нанокomпозитов (Co₄₁Fe₃₉B₂₀)_x(SiO₂)_{100-x} и гибридных мультислоев нанокomпозит–полупроводник [(Co₄₁Fe₃₉B₂₀)_x(SiO₂)_{100-x}/C]₅₀ при различном содержании x наноразмерных гранул ферромагнитного металла Co₄₁Fe₃₉B₂₀ в матрице SiO₂ и различной толщине углеродной прослойки $h < 2$ нм. Исследованы их магнитные и электрические свойства, высокочастотная магнитная проницаемость, магнитооптические спектры и спектры ФМР. Установлено, что при $x < x_{per}$, где x_{per} — порог перколяции по электрической проводимости, как однослойные нанокomпозиты, так и мультислои с прослойками являются суперпарамагнитными: отсутствует гистерезис при комнатной температуре, а температура блокировки, определенная по квазистатическим измерениям, не превышает 20–30 К и слабо зависит от толщины прослойки углерода. При толщинах прослойки $h = 1.2–1.8$ нм действительная и мнимая части комплексной магнитной проницаемости при 50 МГц и при комнатной температуре достигают существенно более высоких значений по сравнению с нанокomпозитами без прослоек углерода, по величине более характерных для ферромагнетиков. Такая зависимость указывает на взаимодействие обменного типа между наногранулами слоев через прослойку углерода. Обсуждается влияние проводящей прослойки на статические и динамические магнитные свойства системы взаимодействующих суперпарамагнитных частиц.

DOI: 10.7868/S0044451017080120

1. ВВЕДЕНИЕ

В последние годы большой интерес проявляется к исследованиям физических свойств магнит-

ных наночастиц и гетерогенных систем на их основе [1, 2]. При этом магнитные наночастицы исследуют как в свободном [2], так и в связанном состоянии: осажденные на подложки [3], в виде коллоидных частиц в магнитных жидкостях [4], в составе композитов [5] и многослойных наноструктур [6]. При уменьшении размера изолированных ферромагнитных частиц происходит переход от многодоменного состояния к однодоменному и затем к суперпара-

* E-mail: granov@magn.ru; gran60@mail.ru

** E-mail: kalinin48@mail.ru

магнитному. Характерным параметром суперпарамагнитного состояния является температура блокировки T_B . При $T < T_B$ магнитный момент частицы ориентирован вдоль одноосной магнитной анизотропии, определяющей энергию блокировки E_B , а при $T > T_B$ — хаотично меняет свое направление. Процесс релаксации магнитного момента изолированной однодоменной частицы описывается законом Нееля – Брауна

$$\tau = \tau_0 \exp(E_B/k_B T), \tag{1}$$

где предэкспоненциальный множитель τ_0 зависит от многих параметров [1, 2], но в законе Нееля – Брауна обычно принимается фиксированной величиной в диапазоне 10^{-13} – 10^{-9} с. Выражение (1) считается справедливым при $E_B/k_B T > 1$. Температура блокировки зависит от характерного времени измерений τ_m , внешнего магнитного поля и эффективной магнитной анизотропии частицы. При статических измерениях условно считается, что температура блокировки

$$T_B^0 = \frac{E_B}{25k_B}, \tag{2}$$

что при $\tau_m = \tau$ соответствует значению $\ln(\tau/\tau_0) = 25$ [2], а экспериментально значение T_B определяется либо по температуре, при которой расходятся температурные зависимости намагниченности в режимах ZFC (образцы охлаждаются от 300 до 5 К в нулевом поле с последующим измерением намагниченности при их нагревании) и FC (образцы охлаждаются от 300 до 5 К в поле, а затем измеряется намагниченность при их отогреве), измеренные в слабых полях, либо по максимуму низкочастотной магнитной восприимчивости. Ситуация существенно усложняется при наличии взаимодействия между суперпарамагнитными частицами, которое может быть диполь-дипольным или обменного типа (через металлическую или диэлектрическую прослойку). В ранних работах учитывалось только диполь-дипольное взаимодействие [1–3, 7, 8].

К настоящему времени не существует последовательной теории, описывающей свойства ансамбля взаимодействующих суперпарамагнитных частиц. В простейшем случае закон Нееля – Брауна модифицируется к виду [7, 8]

$$\tau = \tau_0^{int} \exp \frac{E_B^{int}}{k_B(T - T^{int})}, \tag{3}$$

где параметры τ_0^{int} , E_B^{int} , T^{int} зависят от интенсивности взаимодействия. Такой вид зависимости напоминает релаксацию в спиновых стеклах, что дает основание предполагать возможность перехода от

суперпарамагнитного состояния к состоянию типа спинового стекла [2, 7, 8]. Трудность описания при достаточно сильном взаимодействии между частицами состоит в том, что потенциальные барьеры разных частиц связаны между собой, так как отклонение магнитного момента в одной частице приводит к изменению потенциального барьера для других частиц. Поэтому, строго говоря, интерпретация эксперимента усредненным одночастичным подходом (3) неправомерна.

Удобным модельным объектом для исследования эффектов взаимодействия в ансамблях суперпарамагнитных частиц являются мультислойные структуры магнитных нанокмозитов с прослойками из металла, полупроводника или диэлектрика. Каждый монослой такой структуры представляет собой ансамбль суперпарамагнитных частиц. Варьируя толщину, тип и величину проводимости прослойки между этими слоями, мы можем изменять взаимодействие между монослоями, т. е. между суперпарамагнитными частицами. Ранее на примере структур $[(CoFeZr)_x(Al_2O_3)_{100-x}/(\alpha-Si:H)]_n$ было получено, что если толщина композиционного слоя (суперпарамагнетика) составляет несколько нанометров, а состав его находится до порога перколяции (гранулы не соприкасаются), то полупроводниковая прослойка аморфного гидрогенизированного кремния усиливает взаимодействие между суперпарамагнитными частицами настолько, что структура становится магнитоупорядоченной при комнатной температуре [9, 10]. В настоящее время существует две точки зрения на наблюдаемое явление. Первая связана с увеличением температуры блокировки при введении в суперпарамагнитный композит проводящих прослоек [9] за счет различных граничных условий закрепления магнитных моментов на поверхности гранул. Вторая базируется на возникновении сильного обменного взаимодействия между магнитными моментами гранул через электроны проводимости проводящей прослойки [10, 11], либо через магнитные ионы в прослойке. Впоследствии было найдено, что, судя по поведению динамической магнитной проницаемости, переход к ферромагнитному упорядочению в многослойных структурах с различными типами прослоек возникает только тогда, когда удельное электрическое сопротивление такой структуры становится меньше 0.005 Ом·м [12]. Ни конкретный механизм этого явления, ни насколько указанное поведение является универсальным к настоящему времени не выяснено.

В данной работе исследуются электрические, статические магнитные свойства, динамическая

магнитная проницаемость на частоте 50 МГц, магнитооптические спектры и ФМР-спектры серии образцов $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{C}]_{50}$ при концентрации x ферромагнитных гранул $\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20}$ меньшей порога перколяции по проводимости и по образованию дальнего магнитного порядка внутри одного монослоя. Выбор в данной работе углерода в качестве прослойки связан с тем, что углерод при комнатной температуре слабо взаимодействует с железом и кобальтом, т.е. образование ферромагнитных при комнатной температуре соединений Fe или Co с углеродом маловероятно, свойства исходных нанокмозитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ хорошо изучены [5], а электрическое сопротивление многослойных наноструктур с прослойками из аморфного кремния и углерода одного порядка величины.

2. ОБРАЗЦЫ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Получение пленок сплошных нанокмозитов и периодических структур $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{C}]_{50}$ осуществляли ионно-лучевым методом на напылительной установке, спроектированной на основе вакуумного напылительного поста УВН-2М [5]. Методики изготовления образцов и контроля толщин слоев и прослоек углерода аналогичны описанным в работах [5, 9, 12].

При напылении многослойных структур, содержащих слои композита с различной объемной долей магнитных гранул, использовали составную мишень из металлического сплава $\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20}$ площадью $280 \times 80 \text{ мм}^2$ с пятнадцатью неравномерно распределенными на ее поверхности навесками из SiO_2 и дополнительную мишень из углерода. В процессе напыления между мишенью углерода и подложкой устанавливался V-образный экран, который позволял в одном цикле напыления получать полупроводниковые слои с непрерывно меняющейся толщиной [12]. В результате напыления были получены композиты $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ толщиной около 0.25 мкм, многослойные системы $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{C}]_{50}$ с количеством слоев 50, толщиной композитного слоя $d = 4\text{--}6 \text{ нм}$ и толщиной углеродной прослойки $h = 0.2\text{--}2.0 \text{ нм}$. Размер гранул металла в нанокмозитах при данной технологии и для аналогичных составов, согласно электронномикроскопическим исследованиям, составляет 2–6 нм (см., например, работы [5, 13]).

Отсутствие в полученных образцах заметной концентрации магнитных наночастиц Co_3C , Co_2C и/или Fe_3C подтверждается наблюдением только одиночного пика поглощения в спектрах ФМР.

Элементный состав пленок определяли энергодисперсионной рентгеновской приставкой Oxford INCA Energy 250 на сканирующем электронном микроскопе JEOL JSM-6380 LV. Исследования электропроводности проводили с помощью автоматизированного на базе ЭВМ универсального измерительного комплекса. Высокочастотные магнитные свойства (действительная μ' и мнимая μ'' части комплексной магнитной проницаемости) измеряли резонансным методом на частоте 50 МГц по методике, изложенной в работе [14]. Магнитные свойства изучали с помощью СКВИД-магнитометра в ресурсном центре НИЦ «Курчатовский институт» при 5–300 К и с помощью измерения полевых зависимостей экваториального (поперечного) эффекта Керра (transversal Kerr effect, ТКЕ). Для анализа магнитных фаз также измеряли магнитооптические спектры экваториального эффекта Керра в диапазоне 0.5–4.0 эВ при комнатной температуре и спектры ФМР на частоте 9.15 ГГц. Спектры ФМР определяли резонаторным способом на ЭПР-спектрометре JEOL FA-300 при переменном высокочастотном поле, ориентированном в плоскости пленки. Методики измерений и анализа спектров ФМР описаны в работе [15].

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 представлены зависимости удельного электрического сопротивления ρ , а также действительной μ' и мнимой μ'' частей комплексной магнитной проницаемости от толщины прослойки углерода для гетерогенной системы $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_{33.9}(\text{SiO}_2)_{66.1}/\text{C}]_{50}$. На графике $\rho(h)$ (рис. 1а) можно выделить три участка. Так, при увеличении толщины прослойки до 1.0 нм удельное электрическое сопротивление меняется незначительно. В интервале толщин прослойки углерода $h = 1.0\text{--}1.6 \text{ нм}$ наблюдается резкое уменьшение удельного электрического сопротивления на три порядка величины. Дальнейшее увеличение толщины прослойки практически не изменяет величину удельного электрического сопротивления гетерогенной системы.

Подобные закономерности наблюдались и для других многослойных структур с проводящими про-

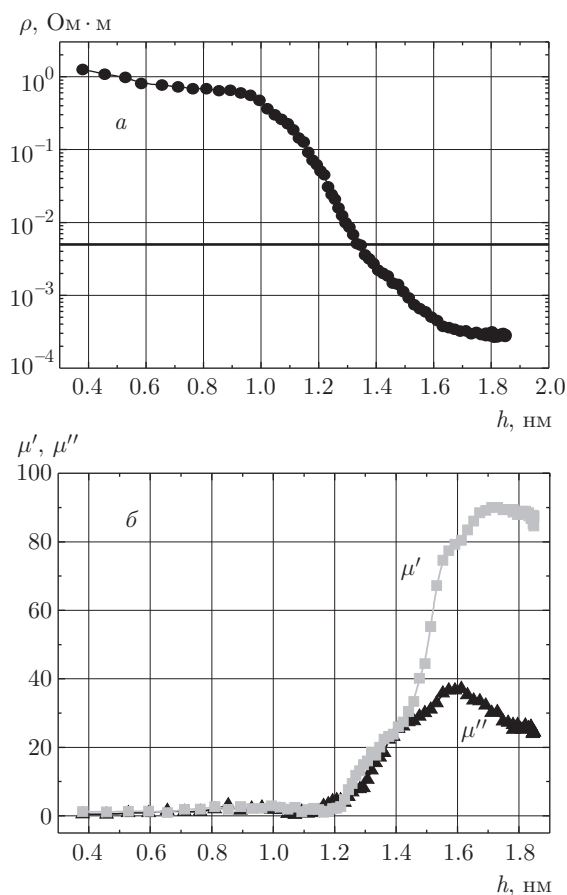


Рис. 1. Зависимости удельного электрического сопротивления ρ (а), действительной μ' и мнимой μ'' частей комплексной магнитной проницаемости на частоте 50 МГц (б) от толщины прослойки h для $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_{33.9}(\text{SiO}_2)_{66.1}/\text{C}]_{50}$. Горизонтальная линия соответствует значению $\rho = 0.005$ Ом·м (толщина слоев нанокompозита $d = 5$ нм)

слоиками [5–7]. Резкое уменьшение электрического сопротивления при увеличении толщины прослойки углерода от 0.4 до 1.8 нм в основном связано с образованием проводящих каналов через прослойку углерода, так как ее электрическое сопротивление много меньше, чем матрицы SiO_2 . Возможно, некоторую роль играет и изменение формы гранул при напылении на углеродную прослойку, приводящее к меньшим туннельным зазорам в нанокompозите, на что указывает анализ данных по спектрам ФМР. Синхронно с уменьшением электрического сопротивления возрастают как действительная, так и мнимая части магнитной проницаемости, при толщине углеродной прослойки $h = 1.6$ нм достигая высоких значений, типичных скорее для ферромагнитных структур, чем для ансамбля суперпарамагнит-

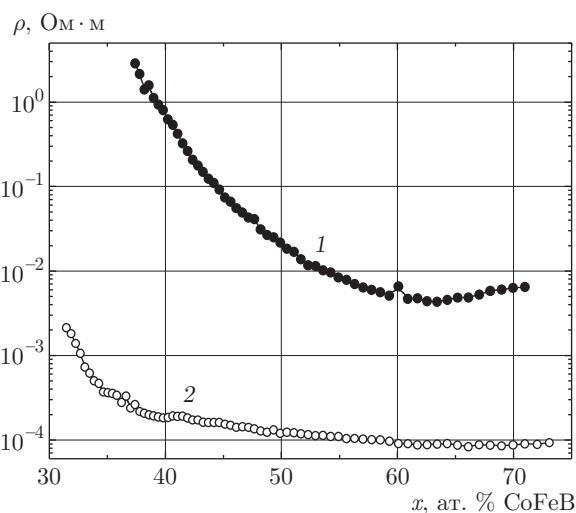


Рис. 2. Концентрационные зависимости удельного электрического сопротивления нанокompозитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ (кривая 1) и многослойных структур $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{C}]_{50}$ (кривая 2). Толщина слоев нанокompозита $d = 5$ нм, прослойки углерода $h = 2$ нм

ных частиц (рис. 1б). Такое поведение может быть связано либо с возникновением дальнего магнитного порядка, либо с особенностями взаимодействия между суперпарамагнитными слоями нанокompозитов через прослойки углерода. Ниже анализируются эти два возможных сценария.

На рис. 2 изображены концентрационные зависимости удельного электрического сопротивления композитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ и многослойных структур $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{C}]_{50}$. Видно, что по мере увеличения концентрации металлической фазы $\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20}$ удельное электрическое сопротивление композита падает на три порядка (кривая 1). Нанокompозиты имеют высокое электрическое сопротивление, и для образцов с малым содержанием металлической фазы электрическое сопротивление не удалось измерить вследствие того, что измеряемые значения лежат за пределами возможностей измерительных приборов. Концентрационная зависимость удельного электрического сопротивления многослойной структуры $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{C}]_{50}$ представлена кривой 2 на рис. 2. Начальный участок зависимости (до 40 ат. % CoFeB), показывающий снижение электрического сопротивления, связан с высоким электрическим сопротивлением композита, а также с постепенным увеличением толщины углеродной прослойки. Образцы с концентрацией металлической фазы более 40 ат. % CoFeB демонстрируют незна-

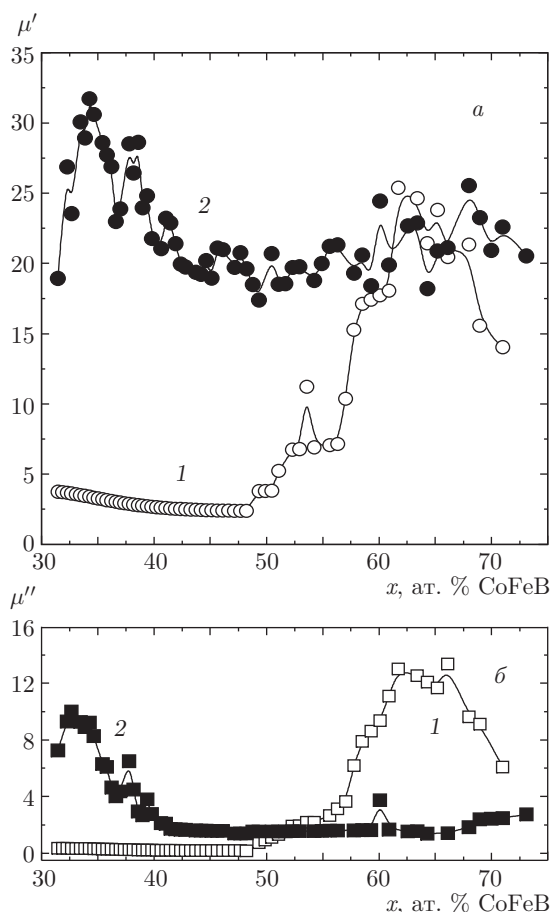


Рис. 3. Концентрационные зависимости действительной (а) и мнимой (б) частей комплексной магнитной проницаемости на частоте 50 МГц нанокomпозитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ (кривые 1) и многослойных структур $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{C}]_{50}$ (кривые 2). Толщина слоев нанокomпозита $d = 5$ нм, прослойки углерода $h = 2$ нм

чительное монотонное снижение удельного электрического сопротивления, обусловленное уменьшением объема диэлектрической фазы SiO_2 в композите.

Таким образом, добавление в исходный композит $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ прослоек углерода привело к уменьшению электрического сопротивления, причем на несколько порядков в структурах со сплошной прослойкой углерода. При этом концентрационная зависимость является типичной для систем металл–диэлектрик.

Концентрационные зависимости комплексной магнитной проницаемости композитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ имеют типичный вид для систем ферромагнетик–диэлектрик и характеризуются максимумом за порогом протекания (кривые 1) как для действительной (рис. 3а),

так и для мнимой частей (рис. 3б). Введение углеродной прослойки в композит существенно изменяет концентрационные зависимости комплексной магнитной проницаемости многослойных структур $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{C}]_{50}$ (кривые 2), как для действительной (рис. 3а), так и для мнимой (рис. 3б) частей. Максимальные значения действительной и мнимой частей магнитной проницаемости, представленные на рис. 3, меньше, чем на рис. 1б, что связано с большей толщиной прослойки углерода.

В настоящее время достаточно хорошо исследованы магнитные свойства большого количества нанокomпозитов с различным сочетанием металлической и диэлектрической фаз [5–15]. При этом если металлическая фаза гранул ферромагнитна, то при малой их концентрации при комнатной температуре гранулы находятся в суперпарамагнитном состоянии, т. е. каждая гранула является монодоменом с магнитным моментом, совершающим под действием тепловой энергии флуктуационные переориентации вдоль локальных осей легкого намагничивания с частотой 10^9 – 10^{13} Гц [1, 2, 7, 8]. В результате дальний ферромагнитный порядок в такой системе при концентрации металлической фазы, меньшей порога протекания, не возникает, что проявляется в отсутствии магнитного гистерезиса и низких значениях комплексной магнитной проницаемости вплоть до порога протекания (кривые 1 на рис. 3).

Для композитов с концентрацией металлической фазы, большей порога протекания, возникает нарастающее межгранульное взаимодействие либо через прямой контакт, приводящий к укрупнению гранул и, как следствие, к увеличению энергии блокировки E_B и температуры блокировки T_B , либо посредством усиливающегося диполь–дипольного взаимодействия и обмена через тонкую диэлектрическую прослойку. Это приводит к формированию коллективного состояния, магнитные свойства которого начинают доминировать над свойствами отдельных гранул. При этом вблизи порога протекания с металлической стороны исследованные нанокomпозиты обнаруживают достаточно большие значения магнитной проницаемости, что и является свидетельством возникновения ферромагнетизма. Следует заметить, что максимумы действительной и мнимой частей магнитной проницаемости наблюдаются при концентрации металлической фазы, большей порога протекания по проводимости, т. е. ферромагнитный обмен между гранулами через диэлектрик мал (см. кривые 1 на рис. 3).

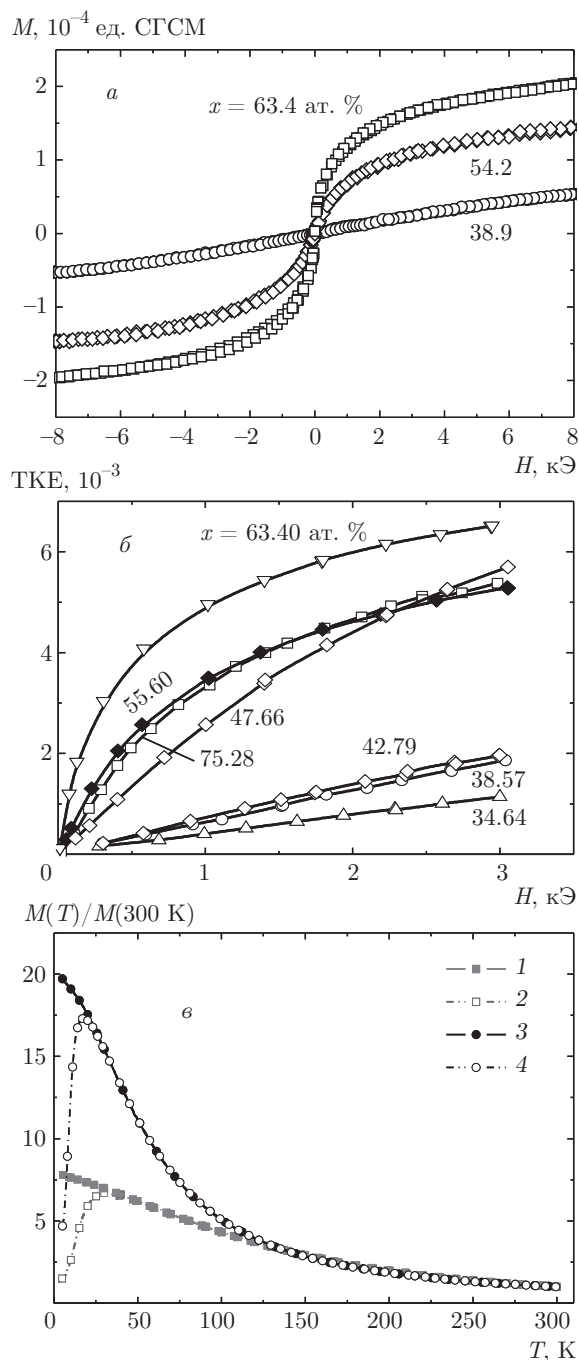


Рис. 4. Полевые зависимости намагниченности (а) и экваториального эффекта Керра (ТКЕ) (б) композитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$, а также температурные зависимости намагниченности (в), измеренные в поле 100 Э в режимах FC (1, 3) и ZFC (2, 4) для композитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ (кривые 1, 2) и многослойных структур $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{C}]_{50}$ (кривые 3, 4). Толщина слоев нанокompозита $d = 5$ нм, прослойки углерода $h = 2$ нм

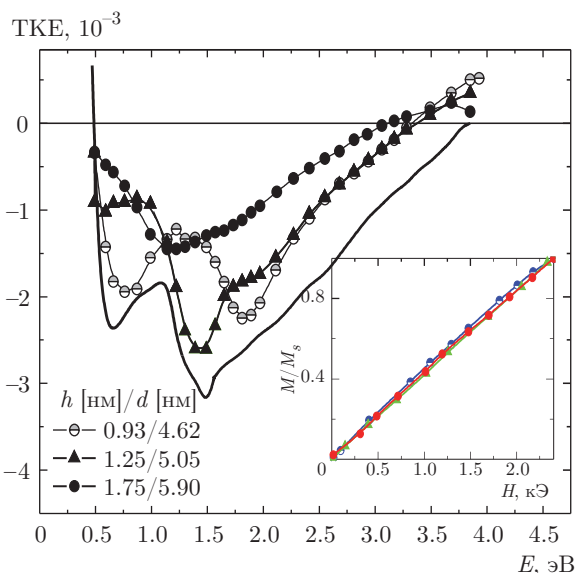


Рис. 5. Спектральные зависимости экваториального эффекта Керра (ТКЕ) для многослойных структур $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_{33.9}(\text{SiO}_2)_{66.1}/\text{C}]_{50}$ с различной толщиной слоев — кривые с символами, и для композита $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_{33.9}(\text{SiO}_2)_{66.1}$ — сплошная кривая. На вставке (в цвете онлайн) нормированные полевые зависимости экваториального эффекта Керра $M/M_s = \text{TKE}(H)/\text{TKE}(H_{max})$ для многослойных структур

Исследование магнитных свойств нанокompозитов без углеродной прослойки показало, что при комнатной температуре заметный магнитный гистерезис с выраженной коэрцитивной силой и остаточной намагниченностью уверенно наблюдается лишь при содержании 63.4 ат. % CoFeB и более. Для образцов с концентрацией 38.9 и 54.2 ат. % CoFeB гистерезис не наблюдается по данным, полученным при измерении как полевых зависимостей намагниченности (рис. 4а), так и экваториального эффекта Керра (ТКЕ) (рис. 4б). На основе анализа этих факторов можно сделать вывод о том, что при $x < 50$ ат. % образцы проявляют суперпарамагнитные свойства и для них как действительная, так и мнимая части магнитной проницаемости имеют низкие значения (см. кривые 1 на рис. 3а,б).

Введение углеродной прослойки вносит существенные изменения в концентрационные зависимости комплексной магнитной проницаемости на частоте 50 МГц до порога протекания (см. кривые 2 на рис. 3а,б). Уже при концентрации магнитной компоненты, меньшей порога протекания, магнитная проницаемость резко возрастает, если толщина прослойки лежит в диапазоне от 1.4 до 2.0 нм (см. рис. 1

и 3), когда электрическое сопротивление становится меньше примерно 0.005 Ом·м. На первый взгляд, это указывает на возникновение дальнего магнитного порядка, как это было обнаружено в случае прослойки из кремния [9–11]. Однако это не так. Во-первых, нами не найден гистерезис для этих составов с углеродной прослойкой. Во-вторых, магнитооптический сигнал практически линейно зависит от поля в полях до 1.0 кЭ (см. вставку на рис. 5), и на магнитооптическом спектре (рис. 5), в отличие от случая мультислоев с прослойкой из кремния [11], не появляются какие-либо новые магнитные фазы кроме фазы CoFeV. Действительно, если в случае мультислоев с прослойкой из кремния магнитооптический сигнал меняет форму и растет по величине [11], то в рассматриваемом случае с прослойкой из углерода магнитооптический сигнал уменьшается при введении прослойки и форма спектра изменяется незначительно, практически не отличаясь от спектра послойно напыленного композита с тем же содержанием металла (рис. 5). И в-третьих, температура блокировки, измеренная в поле 100 Э при статических измерениях, не превышает 20–30 К (см. рис. 4в, а также работу [13]).

Таким образом, все статические измерения свидетельствуют об отсутствии ферромагнитного упорядочения системы суперпарамагнитных частиц при наличии прослойки углерода. В чем же тогда причина высоких значений проницаемости при 50 МГц? При динамических измерениях температура блокировки зависит от характерного «временного окна» измерений τ_m или частоты измерений $f = 1/\tau_m$. В измерениях с помощью СКВИД-магнитометра считается, что $\tau_m \sim 100$ с [2]. Тогда из выражения (1) при $\tau = \tau_0 \exp(E_B/k_B T_B)$ и $\tau_0 = 10^{-9}$ с следует стандартное определение (2) для температуры блокировки T_B^0 . При измерениях экваториального эффекта Керра магнитное поле изменяется с частотой 50 Гц, т.е. отличие от статического случая незначительно. Случай ФМР-измерений при приложении сильного поля, фиксирующего направления магнитных моментов гранул, тоже соответствует статическим измерениям. Однако нетрудно убедиться, что, согласно выражению (1), на частоте $f = 50$ МГц температура блокировки может возрасти в

$$\frac{T_B(f)}{T_B^0} = \frac{25}{\ln(1/f\tau_0)}, \quad (4)$$

раз, т.е., если по-прежнему считать $\tau_0 = 10^{-9}$ с, то приблизительно в 8 раз. Такое увеличение тем-

пературы блокировки с увеличением частоты действительно наблюдалось в экспериментах [7, 8]. Поскольку для наших образцов с углеродной прослойкой и без нее величина T_B^0 не превышает 20–30 К [13], это увеличение не объясняет данных на рис. 1 и 3. Особенно непонятно, почему именно прослойка определенной толщины приводит к возрастанию магнитной проницаемости при комнатной температуре. Как видно из выражения (3), учет взаимодействия принципиально не меняет ситуации, если считать параметры τ_0^{int} , E_B^{int} , T^{int} не зависящими от частоты.

Мы предлагаем следующее объяснение. При наличии проводящей прослойки возникает ферромагнитный обмен между суперпарамагнитными частицами соседних слоев, причем он наиболее сильный, когда прослойка становится непрерывной, а при дальнейшем увеличении толщины прослойки убывает. При низких частотах измерений в силу непрерывного изменения с высокой частотой ориентации магнитных моментов соседних гранул этот обмен не приводит к увеличению энергии блокировки гранул, так как за время измерения магнитные моменты гранул многократно ориентируются параллельно и антипараллельно, т.е. при низких частотах обмен не дает вклада в энергию блокировки E_B^{int} . Свидетельством этому служит весьма слабая зависимость T_B^0 от толщины прослойки при статических измерениях [13]. При высоких частотах такое усреднение обмена к нулевому значению за время измерения $\tau_m = 1/f$ уже не имеет места. Поэтому энергия блокировки $E_B^{int}(f)$ увеличивается именно при определенной толщине прослойки, соответствующей максимуму обмена, что приводит к дополнительному увеличению $T_B(f)$ вплоть до комнатной температуры согласно закону

$$\frac{T_B - T^{int}}{T_B^0} = \frac{E_B^{int}(f)}{E_B^{int}(f \rightarrow 0)} \frac{25}{\ln(1/f\tau_0^{int})} \quad (5)$$

и к максимумам действительной и мнимой компонент магнитной проницаемости при этих толщинах (см. рис. 1).

Подчеркнем, что, возможно, от частоты зависит не только $E_B^{int}(f)$, но и τ_0^{int} , так как τ_0^{int} есть функция как $E_B^{int}(f)$, так и параметра затухания в уравнении Ландау–Лифшица. Данное объяснение является исключительно качественным. Фактически оно означает, что на высоких частотах потенциальный рельеф для движения магнитного момента становится зависящим от частоты. Ферромагнитный обмен через полупроводниковую прослойку может быть обусловлен целым рядом механизмов, об-

суждаемых в литературе, и может быть инициирован как косвенным обменом через электроны проводимости, так и магнитными примесями, неизбежно присутствующими в прослойке. Выяснение природы этого обмена выходит за рамки настоящей работы.

Второй необычный факт, вызванный наличием углеродной прослойки и требующий объяснения, состоит в том, что максимум восприимчивости в мультислоях с прослойками наблюдается при концентрации x металлической фазы, существенно меньшей, чем для объемного нанокompозита (см. рис. 3). Из данных рис. 3 вытекает, что порог перколяции смещается в сторону меньших значений x при введении углеродной прослойки. Причиной такого поведения, по-видимому, является изменение формы гранул, когда они напыляются на углеродную прослойку. Очевидно, что этот эффект наиболее выражен при образовании непрерывной прослойки. Действительно, недавно в работе [15] из анализа спектров ФМР различных многослойных нанокompозитов сделан вывод о том, что форма гранул в слоях нанокompозита зависит от толщины полупроводниковой или диэлектрической прослойки. Для исследуемых в настоящей работе составов нами получены спектры ФМР и по описанной в [15] методике определено, что при напылении нанокompозита на углеродную прослойку гранулы имеют эллиптическую форму. При толщине прослойки, меньшей 0.4 нм и большей 1.8 нм, они значительно вытянуты перпендикулярно плоскости слоев, а в интервале 0.4–1.8 нм отношение длинной оси эллипсоида к меньшей существенно уменьшается, т. е. форма гранул становится ближе к сферической. Это приводит к уменьшению порога перколяции, так как при одинаковой концентрации металла туннельный зазор между гранулами уменьшается.

Отметим, что смещение порога перколяции в сторону меньших концентраций металла при напылении многослойной структуры может иметь место и без прослойки углерода при послойном прерывистом напылении, так как это тоже приводит к изменению формы гранул. Хорошо известно, что свойства суперпарамагнитных частиц зависят от их формы, но, в силу значительной дисперсии по их размерам и ориентации в нанокompозитах, это влияние на магнитные свойства проявляется незначительно и только при низких температурах. Так, например, на рис. 4 (см. выше) видно, что температуры блокировки в системах с прослойками из углерода и без углерода различаются на несколько градусов. Возможно, что форма частиц играет важную роль в формировании энергии взаимодействия между гра-

нулами и слоями, что, безусловно, следует учитывать при последовательном количественном описании высокочастотных свойств многослойных нанокompозитов.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом ионно-лучевого распыления синтезированы нанокompозиты $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}$ и структуры $[(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{100-x}/\text{C}]_{50}$. Наличие углеродной прослойки между слоями суперпарамагнитных гранул, диспергированных в матрице SiO_2 , кардинально изменяет концентрационные зависимости удельного электрического сопротивления и магнитной проницаемости многослойных структур. При концентрациях ферромагнитного металла, меньших порога перколяции, когда при статических измерениях мультислойные системы являются суперпарамагнитными, на частоте 50 МГц как мнимая, так и действительная часть магнитной проницаемости при толщинах углеродной прослойки 0.4–1.8 нм проявляют черты, характерные для магнитоупорядоченной структуры. Кажущееся ферромагнитным поведение динамической магнитной проницаемости не связано с образованием дальнего магнитного порядка, а является следствием обменного взаимодействия между суперпарамагнитными гранулами соседних слоев через прослойку углерода, проявляющегося при высоких частотах.

Работа по синтезу и исследованию физических свойств многослойных пленок выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант № 16-19-10233), а по синтезу и исследованию физических свойств нанокompозитов — при поддержке Министерства образования и науки РФ в рамках проектной части государственного задания (проект № 3.1867.2017/ПЧ).

ЛИТЕРАТУРА

1. X. Battle and A. Labarta, *J. Phys. D* **35**, R14 (2002).
2. С. П. Губин, Ю. А. Кокшаров, Г. В. Хомутов и др., *Успехи химии* **74**, 539 (2005).
3. S. Bader, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1 (2006).
4. В. М. Полуни, А. М. Стороженко, П. А. Ряполов, Г. В. Карпова, *Механика нано- и микродисперсных магнитных сред*, Физматлит, Москва (2015).

5. С. А. Гриднев, Ю. Е. Калинин, А. В. Ситников, О. В. Стогней, *Нелинейные явления в нано- и микрогетерогенных системах*, БИНОМ, Лаборатория знаний, Москва (2012).
6. Е. А. Дядькина, А. А. Воробьев, В. А. Уклеев и др., ЖЭТФ **145**, 472 (2014).
7. J. L. Dormann, F. D. D'Orazio, F. Lucari et al., Phys. Rev. B **53**, 14291 (1996).
8. J. L. Dormann, L. Spinu, E. Tronc et al., J. Magn. Mater. **183**, L255 (1998).
9. А. В. Иванов, Ю. Е. Калинин, В. Н. Нечаев, А. В. Ситников, ФТТ **60**, 2331 (2009).
10. Yu. E. Kalinin, M. A. Kashirin, and A. V. Sitnikov, Sol. St. Phenom. **233–234**, 157 (2015).
11. E. Gan'shina, V. Buravtseva, A. Novikov et al., Sol. St. Phenom. **190**, 361 (2012).
12. О. В. Дунец, Ю. Е. Калинин, М. А. Каширин, А. В. Ситников, ЖТФ **83**, 114 (2013).
13. Е. Н. Каблов, О. Г. Оспенникова, В. П. Пискорский и др., ФТТ **58**, 1086 (2016).
14. В. А. Калаев, Ю. Е. Калинин, В. Н. Нечаев, А. В. Ситников, Вестник Воронежского государственного технического университета, сер. Материаловедение **1(13)**, 38 (2003).
15. С. А. Вызулин, Н. Е. Сырьев, Изв. РАН, сер. физ. **80**, 755 (2016).