

Взаимодействие электромагнитного излучения с магнитно-функционализированным УНТ-наноккомпозитом в субтерагерцовом диапазоне частот

*А. Атадаев¹, А.Л. Данилюк¹, В.А. Лабунов¹, С.Л. Прищепа¹,
А.А. Павлов², А.С. Басаев³, Ю.П. Шаман³*

¹*Белорусский государственный университет информатики
и радиоэлектроники*

²*Институт нанотехнологий микроэлектроники РАН (г. Москва)*

³*НПК «Технологический центр» (г. Москва)*

Interaction of the Electromagnetic Radiation with the Magnetofunctionalized CNT-nanocomposite in the Subterahertz Frequency Range

*A. Atdaev¹, A.L. Danilyuk¹, V.A. Labunov¹, S.L. Prischepa¹,
A.A. Pavlov², A.S. Basaev³, Yu.P. Shaman³*

¹*Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics*

²*INME RAS, Moscow*

³*SMC «Technological Centre», Moscow*

Взаимодействие электромагнитного излучения с магнитно-функционализированным наноккомпозитом на основе углеродных нанотрубок (УНТ) рассмотрено в рамках модели случайного распределения ферромагнитных наночастиц в углеродной матрице, характеризуемого наличием резистивно-индуктивно-емкостных связей (контуров). Модель базируется на представлении наноккомпозита как системы, состоящей из матрицы УНТ, ферромагнитных наночастиц и интерфейсов между УНТ и наночастицами. Показан широкий спектр возможных резонансных явлений, вызванных наличием контуров, а также особенностями свойств самого УНТ-наноккомпозита.

Ключевые слова: углеродные нанотрубки; магнитный наноккомпозит; электромагнитное излучение; резонанс; магнитная проницаемость.

Interaction of the electromagnetic radiation with the magnetofunctionalized CNT-nanocomposite is considered within the model of distributed random resistive-inductance-capacitor contours. The approach is based on the presentation of the nanocomposite as a system consisting of CNT matrix, ferromagnetic nanoparticles and interfaces between CNT and nanoparticles. Calculations reveal a wide spectrum of possible resonance phenomena caused both by the presence of contours and peculiarities of CNT nanocomposite by itself.

Keywords: carbon nanotubes; magnetic nanocomposite; electromagnetic radiation; resonance; permeability.

Введение. В настоящее время магнитные нанокompозиты, состоящие из ферромагнитных наночастиц, распределенных в матрице другого материала, являются предметом интенсивных исследований. Свойствами таких материалов можно управлять посредством магнитного поля, спин-поляризованного тока или электромагнитного излучения (ЭМИ). Новый класс магнитных нанокompозитов на основе углеродных нанотрубок (УНТ) [1] весьма перспективен для СВЧ-применений, таких как линии передачи, смесители и детекторы, поляризаторы, антенны и поглощающие материалы [2–7]. Поглощающие свойства УНТ-нанокompозита в основном определяются диэлектрическими потерями. Однако введение ферромагнитных наночастиц в матрицу УНТ (магнитно-функционализированные УНТ – МФУНТ) приводит к росту поглощения СВЧ-излучения вследствие магнитных потерь [3, 8, 9].

Для прогнозирования поглощающих свойств МФУНТ-нанокompозита необходимы проведение широкого спектра экспериментальных исследований и разработка теоретических методов, которые принимают во внимание различные параметры материала. Одной из главных проблем является разделение механизмов поглощения ЭМИ составными частями сложного нанокompозита, состоящего из углеродной матрицы, ферромагнитных наночастиц, и интерфейсов между ними [3]. В подобных комплексных системах необходимо учитывать свойства каждой из трех компонент нанокompозита, а влияние интерфейсов между наночастицами и углеродной матрицей может быть учтено только посредством численного моделирования их параметров. При этом важно опираться на реальные физические величины в исследуемом частотном диапазоне.

В настоящей работе на основе ранее разработанного подхода к описанию СВЧ-свойств МФУНТ-нанокompозитов [3] исследуется взаимодействие ЭМИ с МФУНТ-нанокompозитом в диапазоне частот 20 – 200 ГГц. Нанокompозит представлен в виде распределенной системы, состоящей из резистивных (R_i), индуктивных (L_i) и емкостных (C_i) связей между отдельными ее компонентами. Подобные образцы могут быть легко приготовлены методом химического парофазного осаждения с использованием в качестве катализаторов 3d ферромагнитных металлов (Fe, Co, Ni) [10].

Модель. Описание взаимодействия ЭМИ с МФУНТ-нанокompозитом основывается на подходе, предложенном в [3] и разработанном с целью определения коэффициентов отражения R и пропускания T ЭМИ магнитным нанокompозитом при частотах выше 1 ГГц. При этом учитывались как магнитные свойства наночастиц, так и структурные, диэлектрические и магнитные свойства УНТ-матрицы и переходных областей между ними. Рассчитанные значения коэффициентов R и T адекватно описывают экспериментальные данные для диапазонов X (8–12 ГГц) и Ka (26–38 ГГц).

В настоящей работе подход [3] развивается, при этом выражения для магнитной восприимчивости и диэлектрической проницаемости нанокompозита с учетом возможных резистивных, емкостных и индуктивных связей между составными частями образца модифицируются. Действительно, в диапазоне частот десятков и сотен гигагерц СВЧ-свойства нанокompозита должны существенно зависеть не только от магнитных и диэлектрических свойств непосредственно материала УНТ-матрицы и магнитных включений, но также и от вклада возникающих в такой сложной системе, как МФУНТ-нанокompозит, резистивно-индуктивно-емкостных связей (или контуров) в поглощение ЭМИ. Данные связи, обусловленные наличием вихревых токов в нанокompозите, описываются $R_iL_iC_i$ -контурами.

МФУНТ-нанокompозит может быть представлен в виде матрицы УНТ, в которой случайным образом распределены наночастицы ферромагнитного материала. Каждая из наночастиц покрыта защитным слоем (интерфейсом). Кроме того, сама матрица

УНТ является дефектной. Подобная структура образца схематично представлена на рис.1. $R_iL_iC_i$ -контуры формируются, главным образом, за счет сопротивления УНТ-матрицы, индуктивности наночастиц и емкости интерфейса. В таком предположении $R_iL_iC_i$ -контуры являются резонансными, т.е. обладают своей собственной частотой резонанса.

Исходя из модели, описанной в [3], для магнитной восприимчивости наноструктурированного композита получено следующее выражение:

$$\mu(\omega) = \frac{-B_\mu + \sqrt{B_\mu^2 + 8\mu_1 Q_\mu}}{4Q_\mu}, \quad (1)$$

где функции

$$B_\mu = \frac{(3-5N) - \mu_1 Q_\mu (6-7N)}{(3-2N)}; \quad (2)$$

$$Q_\mu = \frac{1}{\mu_2} - \frac{i\omega \cdot a\mu_0}{2Z_i(\omega)}; \quad (3)$$

μ_1 и μ_2 – относительные магнитные проницаемости матрицы УНТ и ферромагнитных наночастиц соответственно; a – диаметр наночастиц; ω – циклическая частота ЭМИ; μ_0 – магнитная константа; N – объемная концентрация наночастиц; Z_i – импеданс $R_iL_iC_i$ -контура.

Для диэлектрической проницаемости получено следующее выражение:

$$\varepsilon(\omega) = \frac{-B_\varepsilon + \sqrt{B_\varepsilon^2 + 8\varepsilon_1 Q_\varepsilon}}{4Q_\varepsilon} + i(\sigma/\omega), \quad (4)$$

где функции

$$B_\varepsilon = \frac{(3-5N) - \varepsilon_1 Q_\varepsilon (6-7N)}{(3-2N)}; \quad (5)$$

$$Q_\varepsilon = \frac{Z_i\omega \cdot a\varepsilon_0}{Z_i\omega \cdot a\varepsilon_0\varepsilon_2 + 2i}; \quad (6)$$

ε_1 и ε_2 – относительные диэлектрические проницаемости углеродной матрицы и наночастиц соответственно; ε_0 – диэлектрическая проницаемость вакуума; σ – удельная проводимость МФУНТ-нанокompозита.

Коэффициент отражения определяется как

$$R(\omega) = 20 \log \left| \frac{Z(\omega) - Z_0}{Z(\omega) + Z_0} \right|, \quad (7)$$

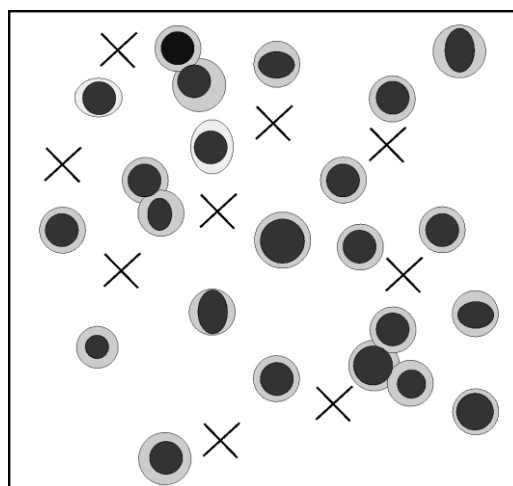


Рис.1. Схематическое изображение МФУНТ-нанокompозита, состоящего из матрицы УНТ (основной фон), ферромагнитных частиц (черный цвет), оболочек между наночастицами и матрицей УНТ (серый цвет) и дефектов матрицы УНТ (крестики). Наночастицы и дефекты распределены в матрице УНТ произвольным образом

здесь $Z(\omega) = \sqrt{\mu_0 \mu(\omega) / \varepsilon_0 \varepsilon(\omega)}$ – волновое сопротивление нанокompозита; $Z_0 = 377 \text{ Ом}$ – характеристический импеданс плоской волны в вакууме.

Коэффициент пропускания определяет эффективность экранирования и зависит от поглощения, отражения и процессов многократного отражения внутри нанокompозита и выражается как

$$T(\omega) = 8,68 \operatorname{Re}(\gamma) + 20 \log \left| \frac{(Z_0 + Z)^2}{4Z_0 Z} \right| + 20 \log \left| 1 + \exp[-d \operatorname{Re}(\gamma)] \frac{(Z_0 - Z)^2}{(Z_0 + Z)^2} \right|, \quad (8)$$

где d – толщина нанокompозита; $\gamma(\omega) = i\omega \sqrt{\mu_0 \mu(\omega) \varepsilon_0 \varepsilon(\omega)}$ – коэффициент распространения.

Импеданс контура Z_i зависит от вклада резонансных цепей, содержащих активное сопротивление R_i , индуктивность L_i и емкость C_i . Его резонансная циклическая частота равна: $\omega_0 = \sqrt{L_i C_i}$. В рассматриваемом МФУНТ-нанокompозите, в котором наблюдается произвольное распределение резистивных, индуктивных и емкостных связей, различные виды соединений между R_i , L_i , и C_i приводят к различным выражениям для импеданса рассматриваемых контуров.

Для последовательной цепи импеданс равен:

$$Z_i = R_i + i \left(\omega L_i - \frac{1}{\omega C_i} \right). \quad (9)$$

Для частично параллельной $R_i L_i C_i$ -цепочки (предполагается, что сопротивление R_i включено последовательно индуктивности L_i , но оба этих элемента включены параллельно емкости C_i) импеданс запишется как

$$Z_i = \frac{R_i + i\omega L_i}{i\omega C_i \left[R_i + i \left(\omega L_i - \frac{1}{\omega C_i} \right) \right]}. \quad (10)$$

Для последовательно-параллельного соединения элементов (L_i и C_i включены параллельно, а R_i – последовательно им) импеданс равен:

$$Z_i = R_i + \left[i\omega C_i + \frac{1}{i\omega L_i} \right]^{-1}. \quad (11)$$

Для полностью параллельной цепочки (L_i , C_i и R_i включены параллельно друг другу) имеем

$$Z_i = \left[R_i^{-1} + i \left(\omega C_i - \frac{1}{\omega L_i} \right) \right]^{-1}. \quad (12)$$

Уравнения (1), (4), (7), (8) вместе с уравнениями (2), (3), (5), (6), (9)–(12) использовались для расчетов частотных зависимостей $\varepsilon(\omega)$, $\mu(\omega)$, $R(\omega)$ и $T(\omega)$. Для всех результатов, приведенных в настоящей работе, удельная проводимость $\sigma = 120 \text{ (Ом}\cdot\text{м)}^{-1}$, а объемная концентрация наночастиц $N = 0,1$ [3]. При расчетах частотных зависимостей использовалась не циклическая, а реальная частота $f = \omega/2\pi$. Кроме того, для диэлектрической проницаемости зависимость от частоты имеет место только для комплексной

составляющей ε'' в простом виде ($\varepsilon''(\omega) \sim \sigma/\omega$), поэтому результаты анализа зависимостей $\varepsilon(\omega)$ не приводятся.

Результаты и обсуждение. Последовательный $R_iL_iC_i$ -контур. В этом случае импеданс описывается выражением (9) и вблизи резонансной частоты контура получена сильная нелинейность зависимости $\mu(f)$ и, следовательно, $R(f)$ и $T(f)$. Результат представлен на рис.2 (кривые 1 и 2). Кроме того, результаты расчетов показывают, что при некотором значении параметров контура на зависимости $\mu(f)$ образуется сильный провал (рис.2,а, кривые 3, 4), что приводит к заметному снижению поглощения ЭМИ. При этом коэффициенты отражения и пропускания существенно возрастают (рис.2,б, кривые 3, 4). Следовательно, параметры $R_iL_iC_i$ -контура определяют характер частотной зависимости коэффициентов R и T – от плавного, размытого резонанса до резкого их возрастания при определенных частотах. В последнем случае резонанс характеризуется заметными ступеньками на зависимостях $R(f)$ и $T(f)$. Так, значения коэффициента отражения увеличиваются от -2 почти до 0 дБ, а коэффициент пропускания возрастает от -22 до -10 дБ. Ширина ступеньки, как показали расчеты, может достигать 10 – 15 ГГц.

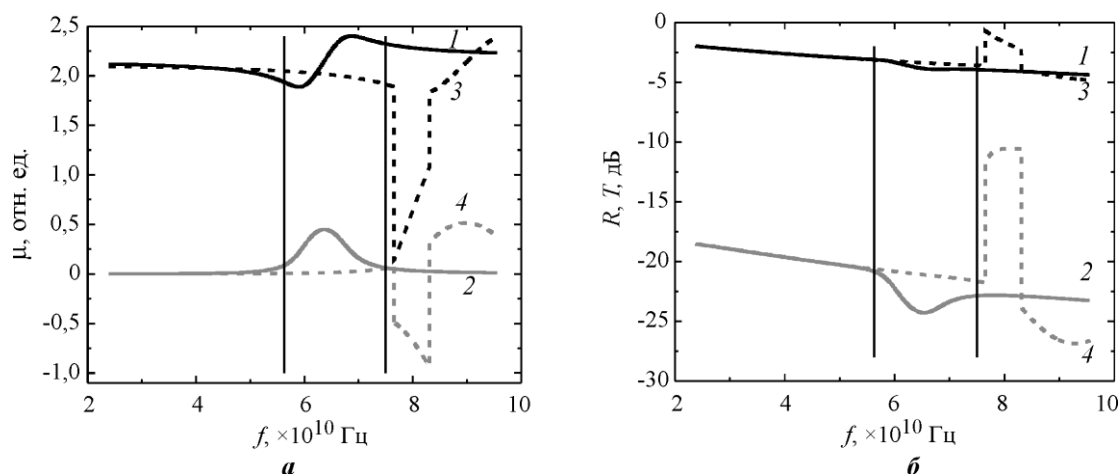


Рис.2. Частотные зависимости действительной (кривые 1 и 3) и мнимой (кривые 2 и 4) частей магнитной проницаемости (а) и коэффициентов отражения R (кривые 1 и 3) и пропускания T (кривые 2 и 4) (б) МФУНТ-нанокompозита для последовательного $R_iL_iC_i$ -контура: 1, 2 – $R_i = 0,012$ Ом, $L_i = 0,4$ пГн, $C_i = 20$ пФ (резонансная частота $f_0 = 56,3$ ГГц); 3, 4 – $R_i = 0,01$ Ом, $L_i = 0,25$ пГн, $C_i = 18$ пФ ($f_0 = 75$ ГГц). Резонансные частоты указаны на рисунке вертикальными линиями

Установлено, что уменьшение индуктивности и емкости интерфейса приводит к сдвигу резонанса в сторону более высоких частот. Рост L_i и C_i (или R_i) приводит к сдвигу частоты резонанса в область более низких частот, сужению ширины резонанса и переходу к размытому неявному резонансу (см. рис.2,б, кривые 1, 2).

Частично параллельный $R_iL_iC_i$ -контур. Установлено, что при некоторых параметрах цепочки на частотных зависимостях μ , R и T возникают ступеньки (рис.3). При этом действительная часть магнитной проницаемости падает почти до нуля, а ее мнимая часть становится отрицательной, что означает ослабление поглощающих свойств. Коэффициент отражения резко растет почти до 0 дБ, а коэффициент пропускания возрастает от -22 до -10 дБ. Резкое изменение значений параметров наблюдается в диапазоне частот $47,89$ – $47,90$ ГГц (см. рис.3, кривые 1, 2). После этого резкого изменения все частотные зависимости параметров являются слабыми вплоть до резонансной частоты контура. Расчеты показывают, что рост сопротивления R_i сдвигает частоту появления

ступеньки по направлению к более высоким значениям и сужает ее ширину. Увеличение индуктивности либо емкости слабо влияет на частоту, при которой появляется ступенька, но вызывает ее сужение. Рост R_i до значений 0,05 Ом либо L_i до 0,08 пГн приводит к сглаживанию частотных зависимостей всех параметров в рассматриваемом частотном диапазоне (см. рис.3, кривые 3, 4).

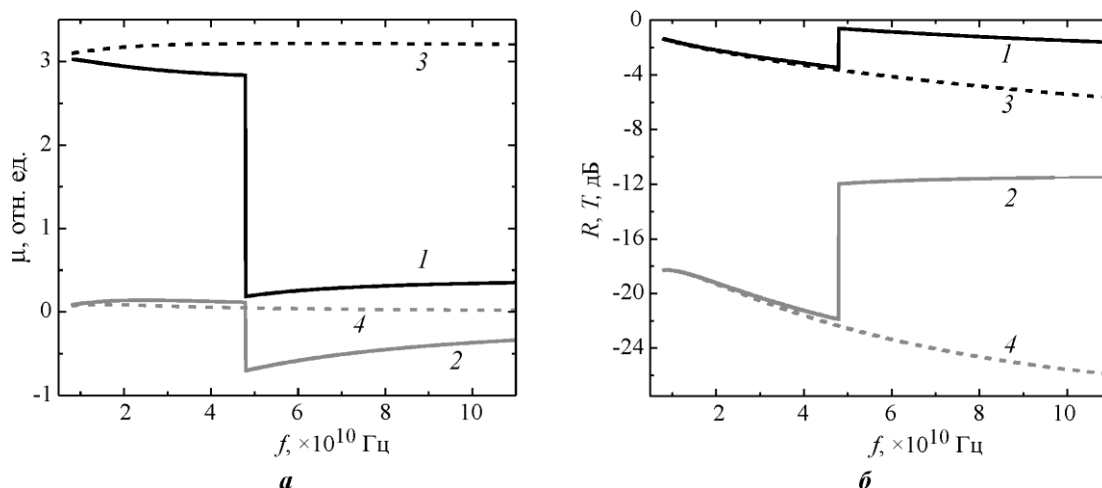


Рис.3. Частотные зависимости действительной (кривые 1 и 3) и мнимой (кривые 2 и 4) частей магнитной проницаемости (а) и коэффициентов отражения R (кривые 1 и 3) и пропускания T (кривые 2 и 4) МФУНТ-наноконпозита для частично параллельного $R_i L_i C_i$ -контура: 1, 2 – $R_i = 0,01$ Ом, $L_i = 0,02$ пГн, $C_i = 1$ пФ ($f_0 = 1,123$ ТГц); 3, 4 – $R_i = 0,01$ Ом, $L_i = 0,08$ пГн, $C_i = 1$ пФ ($f_0 = 562$ ТГц)

Из анализа результатов, представленных на рис.3, следует, что вблизи 50 ГГц наблюдается специфический резонанс, который не связан напрямую с резонансной частотой $R_i L_i C_i$ -контура и вызван особенностями МФУНТ-наноконпозита. При этом функция $Q_{\mu}(\omega)^2$ проявляет локальный минимум. Это означает, что для частично параллельного $R_i L_i C_i$ -контура резонанс свойств наноконпозита обусловлен как резонансом самого контура, так и внутренним резонансом сложной структуры МФУНТ-наноконпозита (главным образом, его магнитной составляющей).

Последовательно-параллельный $R_i L_i C_i$ -контур. Установлено, что при частотах, отстоящих от частоты резонанса f_0 более чем на 30 ГГц, наблюдается размытый резонанс на зависимостях $\mu(f)$, $R(f)$ и $T(f)$ (рис.4, кривые 3, 4). При некоторых значениях R_i , L_i и C_i на этих зависимостях происходит провал шириной порядка 40 ГГц, который еще дальше отстоит от значения f_0 (рис.4, кривые 1 и 2). Таким образом, при последовательно-параллельном контуре одновременно наблюдаются два типа резонанса: достаточно размытый, неявно выраженный и резкий, ступенчатообразный, полосой до 80 ГГц. При этом первый тип резонанса усиливает поглощающие свойства МФУНТ-наноконпозита. Второй тип вызывает появление ступенек на зависимостях $R(f)$ и $T(f)$: R возрастает на 2 дБ, в то время как T увеличивается приблизительно на 8 дБ, что приводит к заметному ослаблению поглощения ЭМИ. Увеличение номинала всех трех составляющих $R_i L_i C_i$ -контура приводит к снижению ширины ступеньки и даже к ее исчезновению (см. рис.4, кривые 3 и 4). Этот эффект возникает при следующем наборе параметров: $R_i = 0,009$ Ом; $L_i = 0,08$ пГн; $C_i = 15$ пФ. Наблюдаемый дополнительный резонанс не связан непосредственно с резонансом цепочки, а обусловлен сложной внутренней структурой наноконпозита. В области этого резонанса функция $Q_{\mu}(\omega)^2$ имеет локальный максимум.

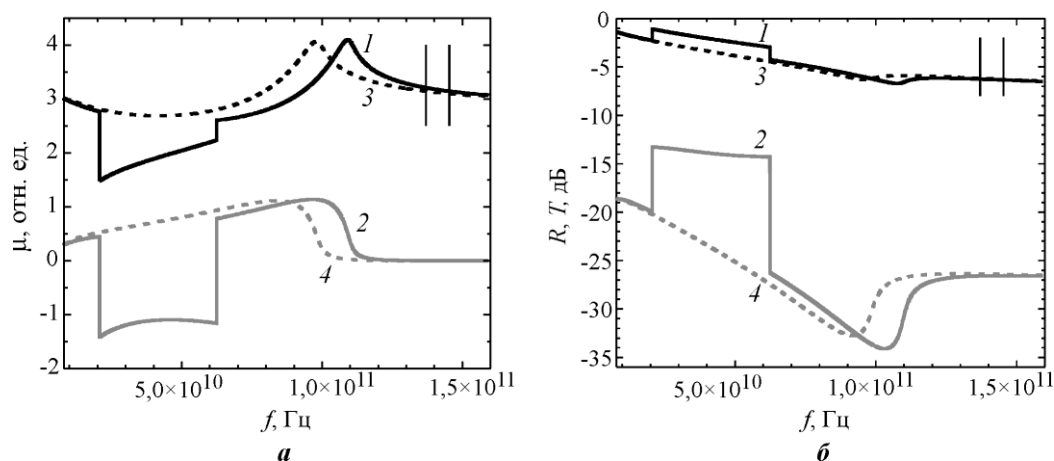


Рис.4. Частотные зависимости действительной (кривые 1 и 3) и мнимой (кривые 2 и 4) частей магнитной проницаемости (а) и коэффициентов отражения R (кривые 1 и 3) и пропускания T (кривые 2 и 4) МФУНТ-нанокompозита для последовательно-параллельного $R_i L_i C_i$ -контура: 1, 2 – $R_i = 0,005$ Ом, $L_i = 0,08$ пГн, $C_i = 15$ пФ ($f_0 = 145,3$ ГГц); 3, 4 – $R_i = 0,005$ Ом, $L_i = 0,09$ пГн, $C_i = 15$ пФ ($f_0 = 137$ ГГц). Резонансные частоты указаны на рисунке вертикальными линиями

Полностью параллельный $R_i L_i C_i$ -контур. В этом случае, как и для частично-параллельного контура, на зависимостях $\mu(f)$, $R(f)$ и $T(f)$ наблюдаются ступеньки, (рис.5). Но эти ступеньки расположены инверсно относительно результата, представленного на рис.3, а именно происходит усиление поглощения ЭМИ с ростом частоты. При этом действительная часть магнитной проницаемости увеличивается заметно с ростом частоты (от 0 до 3). Коэффициенты отражения и пропускания резко падают. Данный эффект представляет интерес, так как свидетельствует о возможности повышения экранирующей способности МФУНТ-нанокompозита в широком частотном диапазоне.

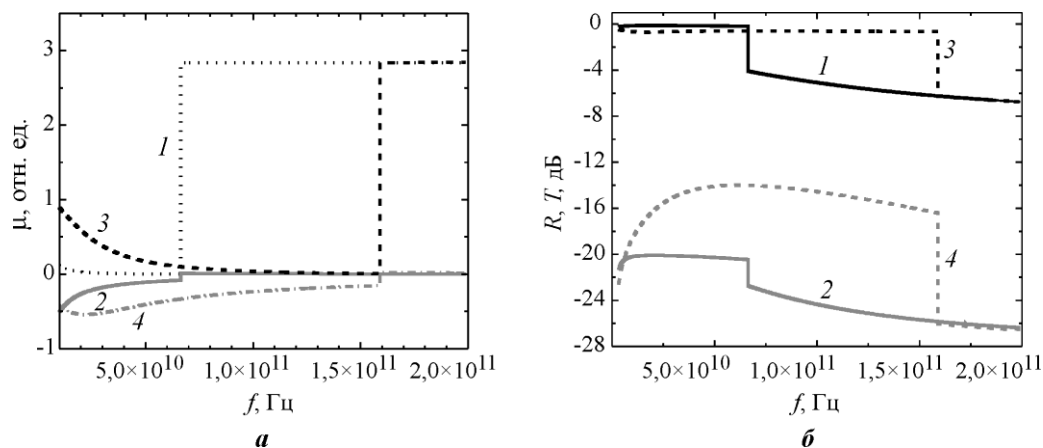


Рис.5. Частотные зависимости действительной (кривые 1 и 3) и мнимой (кривые 2 и 4) частей магнитной проницаемости (а) и коэффициентов отражения R (кривые 1 и 3) и пропускания T (кривые 2, 4 и 5) МФУНТ-нанокompозита для полностью параллельного $R_i L_i C_i$ -контура: 1, 2 – $R_i = 0,002$ Ом, $L_i = 0,08$ пГн, $C_i = 10$ пФ ($f_0 = 172,6$ ГГц); 3, 4 – $R_i = 0,009$ Ом, $L_i = 0,05$ пГн, $C_i = 10$ пФ ($f_0 = 225,1$ ГГц)

Заключение. Полученные результаты свидетельствуют о перспективе применения МФУНТ- нанокompозитов в субтерагерцевом диапазоне ЭМИ. Исследования поглощающих свойств МФУНТ-нанокompозитов в частотном диапазоне до 200 ГГц будут продолжены.

Работа выполнена при финансовой поддержке Фонда фундаментальных исследований Республики Беларусь (проект Ф13Ф-002).

Литература

1. **Saito R., Dresselhaus G., Dresselhaus M. S.** Physical properties of carbon nanotubes. – London: Imperial College Press. U.K., 1998. – 259 P.
2. **Federici J., Moeller L.** Review of terahertz and subterahertz wireless communications // *J. Appl. Phys.* – 2010. – Vol. 107. – N. 11. – P. 111101.
3. Microwave absorption in nanocomposite material of magnetically functionalized carbon nanotubes / **V.A. Labunov, A.L. Danilyuk, A.L. Prudnikava et al.** // *J. Appl. Phys.* – 2012. – Vol. 112. – N. 2. – P. 024302.
4. Very black infrared detector from vertically aligned carbon nanotubes and electric-field poling of lithium tantalate / **J. Lehman, A. Sanders, L. Hanssen et al.** // *Nano Lett.* – 2010. – Vol. 10. – N. 9. – P. 3261–3266.
5. Mixing at 50GHz using a single-walled carbon nanotube transistor / **S. Rosenblatt, H. Lin, V. Sazonova et al.** // *Appl. Phys. Lett.* – 2005. – Vol. 87. – N. 15. – P. 153111.
6. **Nefedov I.S.** Electromagnetic waves propagating in a periodic array of parallel metallic carbon nanotubes // *Phys. Rev. B.* – 2010. – Vol. 82. – N. 15. – P. 155423.
7. **Dresselhaus M.S.** Applied physics: Nanotube antennas // *Nature.* – 2004. – Vol. 432. – N. 7020. – P. 959–960.
8. **Nemilentsau A.M., Slepian G.Ya., Maksimenko S.A.** Thermal radiation from carbon nanotubes in the terahertz range // *Phys. Rev. Lett.* – 2007. – Vol. 99. – N. 17. – P. 147403.
9. The complex permittivity of multi-walled carbon nanotube-polystyrene composite films in X-band / **P.C.P. Watts, D.R. Ponnampalam, W.K. Hsu et al.** // *Chem. Phys. Lett.* – 2003. – Vol. 378. – N. 5–6. – P. 609–614.
10. Interplay between exchange interaction and magnetic anisotropy for iron based nanoparticles in aligned carbon nanotube arrays / **A.L. Danilyuk, A.L. Prudnikava, I.V. Komissarov et al.** // *Carbon.* – 2014. – Vol. 68. – P. 337–345.

Статья поступила 22 января 2015 г.

Амдаев Атаглыч – аспирант кафедры защиты информации БГУИР (г. Минск). *Область научных интересов:* углеродные наноструктуры, поглощающие свойства магнитных нанокompозитов.

Данилюк Александр Леонидович – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры микро- и нанoeлектроники БГУИР (г. Минск). *Область научных интересов:* полупроводниковые и углеродные наноструктуры, высокочастотные свойства магнитных нанокompозитов.

Лабунов Владимир Архипович – академик НАН Республики Беларусь, доктор технических наук, профессор, главный научный сотрудник БГУИР (г. Минск). *Область научных интересов:* микроэлектроника и нанoeлектроника.

Прищепа Сергей Леонидович – доктор физико-математических наук, профессор кафедры защиты информации БГУИР (г. Минск). *Область научных интересов:* сверхпроводниковые наноструктуры, углеродные нанокompозиты, наномагнетизм. **E-mail:** prischepa@bsuir.by

Павлов Александр Александрович – кандидат технических наук, начальник отдела разработок и исследований микро- и наносистем ИНМЭ РАН (г. Москва). *Область научных интересов:* наноструктурированные углеродные материалы, современные технологии и материалы микро- и нанoeлектроники, МЭМС, НЭМС.

Басаев Александр Сергеевич – кандидат физико-математических наук, первый заместитель директора НПК «Технологический центр» (г. Москва). *Область научных интересов:* системы автоматического проектирования ИС, наноматериалы и наноразмерные элементы для ИС и МЭМС/НЭМС.

Шаман Юрий Петрович – кандидат физико-математических наук, начальник сектора научно-исследовательской лаборатории перспективных процессов НПК «Технологический центр» (г. Москва). *Область научных интересов:* углеродные наноматериалы, моделирование технологических процессов микро- и нанoeлектроники.