

Poznań, 8 maja 2024 r.

## Recenzja

### rozprawy doktorskiej mgr inż Kacpra Brzuska

Rozprawa doktorska Pana mgr inż. Kacpra Brzuska pod tytułem: *Magnetic response of composites of magnetic nanoparticles in dielectric matrices to the alternating field of the microwave frequency range* została przygotowana na Wydziale Podstawowych Problemów Techniki, na Politechnice Wrocławskiej, pod kierownictwem dra hab. Andrzeja Janutki. Kandydat ubiega się o nadanie stopnia doktora w dyscyplinie nauki fizyczne, a przygotowana przez niego dysertacja dotyczy kompozytowych materiałów złożonych z nanocząstek magnetycznych zatopionych w dielektrycznej matrycy. Rozprawa doktorska skupia się na mikromagnetycznych i teoretycznych badaniach wpływu fluktuacji termicznych i mikofalowego pola zewnętrznego na dynamikę magnetycznych kompozytów.

#### Temat rozprawy, sformułowanie problemu naukowego

Badania dynamiki magnetyzacji w nanostrukturach magnetycznych są prowadzone intensywnie od kilkudziesięciu lat. W ostatnich latach duża część aktywności naukowej dotyczy propagacji koherentnych wzburzeń magnetycznych (fal spinowych) w nanostrukturach i teksturach magnetycznych, ze względu na potencjalne zastosowania fal spinowych do przewarzenia informacji w nanoskali. Ten nurt badań rzadko obejmuje problem elektromagnetycznych właściwości nanostruktur i kompozytów magnetycznych. Odpowiedź elektromagnetyczna kompozytu składającego się z nanocząstek magnetycznych umieszczonych w dielektrycznej matrycy na pole radiowe o gigahercowych częstotliwościach jest różna od odpowiedzi litych materiałów magnetycznych. Wynika to z redukcji prądów wirowych (przez galwaniczną izolację nanocząstek) oraz z zwiększenia fluktuacji termicznych (w związku z małym rozmiarem nanocząstek). Oba czynniki wpływają na mechanizmy dyssypacji energii i na odpowiedź dynamiczną kompozytu w zakresie mikrofalowym (zwiększenie przenikalności magnetycznej, modyfikacja efektów nieliniowych). Z wyżej wymienionych względów, recenzent uważa, że podjęty w rozprawie temat jest nowatorski i wymaga badań w celu pogłębienia tej tematyki, szczególnie w odniesieniu do studiów mikromagnetycznych i ich teoretycznej analizy. Podjęcie tego typu badań wymaga rozwoju technik numerycznych i podejść teoretycznych opisujących dynamikę układów superparamagnetycznych i antyferromagnetycznych nanoziaren w obecności fluktuacji termicznych. Są to problemy fundamentalnie ważne z punktu widzenia mikromagnetycznego opisu magnetycznych układów kompozytowych.

Mając to na uwadze można stwierdzić, że temat rozprawy został wybrany trafnie, oddaje przedmiot oraz cel pojętych badań i zapowiada oryginalne studia numeryczne i teoretyczne w dyscyplinie nauk fizycznych.

### Forma i struktura rozprawy

Rozprawa jest zbiorem pięciu monotematycznych artykułów naukowych, opublikowanych w języku angielskim w recenzowanych międzynarodowych czasopismach naukowych, z dodatkowymi materiałami. Jej zasadnicza część liczy 93 strony i składa się z czterech rozdziałów: *Introduction* (32 strony), *Articles* (46 stron), *Summary* (8 stron) oraz *Appendix* (6 stron), które poprzedzone są wykazem artykułów naukowych Kandydata. Ponadto rozprawa zawiera części posiadające odrębną numerację stron, tj.: spis treści, streszczenie (w języku polskim i angielskim), bibliografię i spis rysunków.

W pierwszej części rozprawy (*Introduction*) Kandydat przedstawia cel i motywacje prowadzonych badań. Następnie, krótko referuje podstawowe zagadnienia teoretyczne dotyczące dynamiki magnetyzacji w nanocząstkach magnetycznych z anizotropią, w obecności mikrofalowych pól zewnętrznych, i z uwzględnieniem wpływu fluktuacji termicznych. Końcowa część wstępu pełni rolę komentarza, gdzie Doktorant czytelnie streszcza główne wyniki badań, odnosząc się do kolejnych artykułów włączonych do rozprawy.

Artykuły stanowiące najistotniejszą część dysertacji zostały zamieszczone w kolejności, która odpowiada pogłębianiu tematu podjętego przez Kandydata.

W podsumowaniu (*Summary*) Doktorant wymienił i opisał struktury, które badał oraz dość krótko przedstawił najistotniejsze wnioski dotyczące badań numerycznych, które przeprowadził.

Kolejny rozdział (*Acknowledgements*) przedstawia informację o wsparciu grantowym i instytucjonalnym oraz podziękowania dla dr Lepadatu i prof. Janutki. Dalsza część tego rozdziału zawiera, wymagane formalnie, oświadczenia o wkładzie współautorów artykułów włączonych do rozprawy.

Dodatek (*Appendix*) opisuje materiały stosowane w badanych kompozytach magnetycznych i przedstawia metody litograficzne używane do wytwarzania tego typu kompozytów (litografia w formie nanodruku).

Na końcu rozprawy zamieszczono bibliografię liczącą około 130 pozycji literaturowych.

Zadaniem recenzenta następujące zmiany polepszyłyby czytelność rozprawy:

- Rozdział 3, opisujący podstawowe zagadnienia teoretyczne dotyczące dynamiki magnetyzacji w nanocząstkach magnetycznych z anizotropią, mógłby być napisany nieco czytelniej,

z zwiększa liczbą odniesień do podręcznikowej literatury. W szczególności dotyczy to części opisującej wpływ fluktuacji termicznych na dynamikę magnetyzacji.

- W rozprawie brakuje części przedstawiającej metodologię badań. Kandydat powinien krótko opisać stosowane przez niego narzędzia i metody numeryczne.

Pomimo tych uwag i sugestii struktura rozprawy czytelna, co pozwala na dość łatwe poruszanie się w tekście. W rozprawie dobrze przedstawiono cele i motywacje badań. Krótkie podrozdziały omawiające artykuły naukowe włączone do rozprawy ułatwiają ich zrozumienie i dobrze pełnią funkcję narracyjną, podkreślając spójność tematyki artykułów.

### **Samodzielność prowadzenia pracy naukowej**

Badania przedstawione w rozprawie były realizowane w małym trzyosobowym zespole naukowym obejmującym, poza Kandydatem, jego promotora prof. Andrzeja Janutkę oraz prof. Caroline Ross z MIT. Pierwszym autorem w każdej z pięciu publikacji stanowiących rozprawę jest Kandydat, a funkcję autora korespondencyjnego pełni jego promotor. Z oświadczeń prof. Janutki i prof. Ross wynika, że oboje byli zaangażowani w sformułowanie problemów badawczych oraz uczestniczyły w pisaniu i korekcie manuskryptów oraz weryfikacji prowadzonych przez doktoranta badań. Pozwala to sądzić, że Doktorat przy wsparciu dwóch bardziej doświadczonych naukowców, przeprowadził zasadniczą część badań naukowych, rozwiązywał większość problemów badawczych i interpretował wyniki oraz miał główny udział w powstawianiu manuskryptów prac naukowych. Taka forma współpracy jest naturalna w zespole teoretycznym, gdzie doktorant realizuje zadania w ramach projektu badawczego.

Recenzent uważa, że Doktorant zrealizował w rozprawie rozbudowany i spójny program badawczy. Uważa lektura artykułów i dysertacji pozwala sądzić, że większość kluczowych zadań przeprowadził osobiście. Świadczy to o umiejętność samodzielnego prowadzenia pracy naukowej przez Kandydata. Warto zwrócić uwagę, że Doktorant załączył tylko część prac naukowych, których był współautorem, wybierając te, które najmocniej wskazują na jego samodzielność naukową w tematyce rozprawy doktorskiej.

### **Wiedza teoretyczna Kandydata w dyscyplinie nauki fizyczne**

Przeprowadzenie badań w temacie rozprawy doktorskiej wymagało zarówno szerokiej wiedzy teoretycznej, dotyczącej opisu dynamiki magnetyzacji nanocząstek magnetycznych z anizotropią w obecności fluktuacji termicznych, oraz specjalistycznych umiejętności numerycznych, związanych z przeprowadzaniem symulacji mikromagnetycznych. W Rozdziale 3 *Elements of macroscopic description of magnetization dynamics* Kandydat omawia szereg zagadnień teoretycznych

dotyczących zrealizowanych badań, przedstawionych we włączonych do rozprawy publikacjach:

- równanie Landaua-Lifshitz-Gilberta w obecności fluktuacji termicznych,
- efektywna stała wymiany i efektywna magnetyzacja nasycenia dla magnetycznych kompozytów złożonych z ziaren magnetycznych różnej anizotropii, w przybliżeniu modelu RMA *random magnetic anisotropy*,
- dynamiczna podatność magnetycznej oraz odpowiedzi nanocząstki magnetycznej z anizotropią na mikrofalowe pola magnetyczne,
- czasu relaksacji i ewolucja uśrednionej amplitudy dynamicznej magnetyzacji dla cząstki magnetycznej z anizotropią w obecności fluktuacji termicznych.

Ponadto we wszystkich pracach włączonych do rozprawy Kandydat prezentuje wyniki osobiście przeprowadzonych symulacji mikromagnetycznych wykonanych z pomocą pakietów *MuMax3* lub *Boris Computational Spintronics*. Przeprowadzenie tych badań numerycznych wymagało od Kandydata opanowania obsługi złożonych środowisk obliczeniowych i przeprowadzenia zaawansowanego przetwarzania danych.

Recenzent uważa, że w Rozdziale 3 Kandydat mógłby opisać, szerzej niż w publikacji P4, dynamikę magnetyzacji antyferromagnetyku.

Zdaniem recenzenta Doktorant wykazuje się dużą wiedzą teoretyczną w dyscyplinie nauki fizycznej. Posiada ekspercką wiedzę dotyczącą teoretycznego opisu dynamiki magnetyzacji w obecności fluktuacji termicznych oraz bardzo dobrą znajomość narzędzi numerycznych do symulacji mikromagnetycznych.

### **Wyniki badań, oryginalne rozwiązanie problemu naukowego**

Rozprawa zawiera cztery publikacje naukowe, które raportują wyniki badań Kandydata dotyczące dynamiki magnetyzacji w magnetycznych kompozytach składających się z nanocząstek magnetycznych o jednoosiowej anizotropii magnetocrystalicznej, z uwzględnieniem fluktuacji termicznych.

#### Publikacja P1: High-frequency magnetic response of superferromagnetic nanocomposites

Doktorant rozważał kompozyty magnetyczne utworzone przez płaskie prostopadłościennie superparamagnetyczne nanocząstki, z losową orientacją anizotropii magnetocrystalicznej, uporządkowane w warstwy i umieszczone w dielektrycznej matrycy. Do opisu anizotropii magnetycznej układu zastosował model RMA (random magnetic anisotropy). W statycznych badaniach mikromagnetycznych rozważane kompozyty charakteryzowały się strukturą domenową. Kandydat symulował również odpowiedzi kompozytów na zmienne pole magnetyczne o częstotliwościach w zakresie GHz. Doktorant wykazał, że odpowiedź magnetyczna na zmienne pole skierowane w płaszczyźnie warstwy poprzecznie do osi łatwego namagnesowania (również leżącej w płaszczyźnie)

Jest typowa dla warstw ferromagnetycznych. Jednakże pewne modyfikacje dynamiki kompozytów zauważalne były przy zmianie materiałów i ziarnistości kompozytu. Dynamiczna podatność magnetyczna wyznaczona przez Kandydata za pomocą symulacji mikromagnetycznych była większa niż przewiduje to model teoretyczny – przekraczała tzw. Limit Snoeka. Interesującym wynikiem jest reakcja kompozytów magnetycznych na pole magnetyczne obracające się w płaszczyźnie warstwy. Odpowiedź magnetyczna pozostaje w tym przypadku stabilna przy wyższych wartościach pola napędowego, inaczej niż ma to miejsce w przypadku liniowo spolaryzowanego pola pompującego. Dla bardzo silnego obracającego się pola magnetycznego, Kandydat wykazał występowanie reżimu chaotycznego dla dynamiki magnetyzacji.

W trakcie obrony rozprawy Kandydat powinien donieść się do następujących pytań:

- W jaki sposób należy rozumieć stwierdzenie Doktoranta pojawiające się w manuskrypcie: „*Domain structures appear despite lack of the magnetostatic interactions as a consequence of the competing complex exchange interactions and RMA.*” Przecież Kandydat nie eliminuje zupełnie oddziaływań magnetostatycznych w obliczeniach teoretycznych. Uwzględnić anizotropię kształtu w statyce układu magnetycznego wprowadzając anizotropię typu łatwa płaszczyzna.
- Jak można uzasadnić pojawiające się w komentarzu do pracy P1 stwierdzenie, że nanocząstki kompozytu są sprzężone wymienne?
- Jak rozmiar obserwowanych domen zależy do wartości parametrów materiałowych opisujących oddziaływanie wymienne i anizotropię.

Publikacja P2: High-frequency magnetic response of superparamagnetic composites of spherical  $Fe_{65}Co_{35}$  nanoparticles

Paca P2 jest rozwinięciem poprzedniej pracy P1. Kandydat bada paramagnetyczne nanocząstki o kształcie sferycznym umieszczone w dielektrycznej matrycy w sieci kubicznej, z losową orientacją kierunku anizotropii magnetokrystalicznej. W tym układzie materiał matrycy stanowi większą frakcję objętościową kompozytu niż w przypadku układu badanego w pracy P1, co osłabia oddziaływanie między cząstkami i zwiększa wpływ fluktuacji temperaturowych. Kandydat stwierdził, że te stosunkowo słabe oddziaływanie natury magnetostatycznej są ważne dla dynamicznej odpowiedzi magnetycznej kompozytu. Ich obecność powoduje, że dynamika nanokompozytu nie może być opisana w ramach linowej teorii Browna-Neela. Ponadto stabilizują one dynamiczną odpowiedź układu w reżimie wyższych temperatur, gdy bariera wynikająca z anizotropii może być łatwiej pokonywana w przypadku pojedynczej nanocząstki. Dodatkowo Doktorant badał wpływ statycznego pola magnetycznego na dynamikę układu i stwierdził, że w silnych statycznych polach zewnętrznych fluktuacje termiczne dynamicznej magnetyzacji są zmniejszone.

W trakcie obrony rozprawy Kandydat powinien donieść się do następujących pytań:

- Obliczenia mikromagnetyczne przeprowadza się dla skończonego układu 4x4x4 z okresowymi warunkami brzegowymi. Czy wybór rozmiaru tej superkomórki ma wpływ na oddziaływania magnetostaticzne i jakie ma to znaczenie dla dynamicznej odpowiedzi układu?
- W jaki sposób zmieniłyby się wyniki dla innych orientacji statycznego pola zewnętrznego?

Publikacja P3: *High-frequency magnetic response of superparamagnetic composites of spherical Fe and Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanoparticles*

Kandydat kontynuował badania dynamiki magnetyzacji dla kompozytu złożonego ze sferycznych superparamagnetycznych nanocząstek. Istotną zmianą w stosunku do poprzednich badań, przedstawionych w pracy P2, jest zastosowanie w nanocząstkach materiału charakteryzującego się silną anizotropią kubiczną i małą wartością magnetyzacji nasycenia. W obecności tego typu anizotropii fluktuacje termiczne dynamiki magnetyzacji są słabsze. Jednakże mała wartość magnetyzacji nasycenia powoduje, że oddziaływania magnetostaticzne, odpowiedzialne za stabilizację dynamiki magnetyzacji, są również słabsze. W tej pracy Doktorant zademonstrował, że rozmiar nanocząstek jest dodatkowym czynnikiem, który wpływa na stabilizację dynamiki magnetyzacji w kompozycie. Zwiększenie rozmiaru superparamagnetycznych cząstek zwiększa oddziaływanie dipolowe i poprawia stabilizację. Kandydat pokazał, że uzyskana w ten sposób poprawa stabilizacji odbywa się kosztem stopniowego otwierania się pętli histerezy dla oscylującej magnetyzacji, czyli prowadzi do zwiększania strat energii.

W trakcie obrony rozprawy Kandydat powinien donieść się do następujących pytań:

- Czy badając proces otwierania się dynamicznej pętli histerezy można stwierdzić przejście do uporządkowania ferrometrycznego? Jak ten proces mógłby wyglądać jeśli chodzi o wnętrze i przypowierzchniowe obszary nanocząstki.
- Jak oddziaływanie dipolowe pomiędzy nanocząstkami wpływa na indukowanie struktury wielodomowej w sferycznych nanocząstkach?
- Czy możemy określić dla jakich rozmiarów monodomowych nanocząstek dynamika magnetyzacji nie jest jednorodna, czyli nanocząstek nie można traktować jak precesujących makrospinów?

Publikacja P4: *High-frequency magnetic response of arrays of planar Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub> nanodots: effects of bias field and thermal fluctuations*

W publikacji P4 Doktorant badał kompozyt składający się z płaskich superparamagnetycznych dysków ułożonych w warstwy i uporządkowanych w sieci sześciokątnej w każdej z warstw. Dyski charakteryzowały się losowym rozkładem anizotropii magnetokrystalicznej w płaszczyźnie warstw. Badając konfiguracje statyczną układu Kandydat zaobserwował współzawodnictwo pomiędzy anizotropią kształtu i anizotropią magnetokrystaliczną dla rozpatrywanych układów, zależne od rozmiarów nanocząstek. Ze względu na silną anizotropię kształtu dysków, częstotliwość FMR kompozytu



jest istotnie zwiększona w porównaniu do kompozytów zawierających sferyczne nanocząstki. Oznacza to, że częstotliwość odpowiadająca maksimum odpowiedzi dynamicznie jest znacząco wyższa niż dla analogicznych kompozytów o nanocząstkach bez anizotropii kształtu. Statyczne pole zewnętrzne, przyłożone prostopadle do płaszczyzny dysków, odgrywa rolę w zwiększaniu odpowiedzi magnetycznej i stabilizowaniu jej w wysokiej (pokojojej) temperaturze.

W trakcie obrony rozprawy Kandydat powinien donieść się do następujących pytań:

- Czy anizotropia kształtu pojedynczej cząstki może być uwzględniona w modelu RMA?
- Czy zmiana typu sieci dla ułożenia kropek w płaszczyźnie na sieć kwadratową (czterech najbliższych sąsiadów zamiast sześciu) zmieni własności układu?

Publikacja P5: *High-frequency magnetic response of crystalline and nanocrystalline antiferromagnetic NiO*

W ostatniej pracy włączonej do rozprawy Kandydat przeprowadził symulacje mikromagnetyczne dynamiki magnetyzacji (i wektora Neela) dla antyferromagnetyka (NiO), złożonego z nieoddziałujących wymiennie ziaren. Ziarna mają postać ściennie sześciennych centrowanych sześciennych komórek, gdzie antyferromagnetyczne oddziaływania pomiędzy drugimi sąsiadami są silniejsze niż ferromagnetyczne oddziaływania pomiędzy najbliższymi sąsiadami. Doktorat przyjął, że w każdym ziarnie jednoosiowa anizotropia jest losowo zorientowana wzdłuż jednego z czterech diagonalnych kierunków. Ponadto założył, że komórki nie są sprzężone wymiennie. Kandydat pokazał, że polikrystaliczny NiO, taktowany jako kompozyt o losowej orientacji anizotropii sześciennych ziaren jest obiecującym materiałem ze względu na jego właściwości izolacyjne i wysoką temperaturę Néela. Chociaż podatność dynamiczna tego antyferromagnetyka jest niska to iloczyn podatności i częstotliwości, który można traktować „współczynnik efektywności” kompozytu, jest stosunkowo wysoki. Wynika to z subterahercowej dynamiki antyferromagnetyka. Doktorant wykazał, że wpływ fluktuacji termicznych na dynamiczną podatność magnetyczną jest mały, nawet w temperaturze pokojowej, i nawet w przypadku nanokrystalicznego antyferromagnetyka. Z badań przeprowadzonych przez Kandydata wynika również, że odpowiedź magnetyczna jest liniowa dla znacznie szerszych zakresów częstotliwości i amplitud pola niż w przypadku układów ferromagnetycznych i superferromagnetycznych.

W trakcie obrony rozprawy Kandydat powinien donieść się do następującego pytania:

- Czy w symulacjach mikromagnetycznych uwzględniano oddziaływanie magnetostatyczne? Czy oddziaływanie magnetostatyczne związane z dynamiką spinów odgrywa jakąkolwiek rolę w stabilizacji odpowiedzi dynamicznej.
- Który z czynników jest najistotniejszy dla stabilizacji dynamiki układu, gdy temperatura zbliża się do temperatury Neela?

Wyniki badań oraz ich interpretacja przedstawiona w rozprawie są zdaniem Recenzenta ważne, intersujące i oryginalne. Doktorant przeprowadził systematyczne badania dotyczące własności dynamicznych kompozytów superferromagnetycznych i antyferromagnetycznych w obecności fluktuacji termicznych. Opublikowane wyniki zawierają cenne wskazówki dotyczące projektowania takich układów, pod kątem maksymalizacji i stabilizacji odpowiedzi dynamicznej na mikrofalowe pole zewnętrzne.

### Podsumowanie

Zdaniem Recenzenta rozprawa doktorska Pana mgra inż. Kacpra Brzuska p.t. *Magnetic response of composites of magnetic nanoparticles in dielectric matrices to the alternating field of the microwave frequency range* spełnia ustawowe wymogi opisane w Art. 187 Ustawy Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce (z dnia 20 lipca 2018 r) stawiane rozprawom doktorskim. Dysertacja ma formę zbioru opublikowanych i powiązanych tematycznie artykułów naukowych oraz zawiera streszczenie przygotowane w języku polskim i angielskim (ust. 3 i 4). Rozprawa prezentuje ogólną wiedzę teoretyczną Kandydata w dyscyplinie nauki fizycznej i jego umiejętności w zakresie samodzielnego prowadzenia pracy naukowej (ust. 1). Jej przedmiotem jest oryginalne rozwiązanie problemu naukowego (ust. 2).