



Kraków, 16.05.2024

Dr hab. inż. Michał Krupiński, prof. IFJ PAN  
Instytut Fizyki Jądrowej  
im. Henryka Niewodniczańskiego  
Polskiej Akademii Nauk  
w Krakowie

**Recenzja rozprawy doktorskiej pana mgr. Kacpra Brzuszką  
pt. „Magnetic response of composites of magnetic nanoparticles in dielectric  
matrices to the alternating field of the microwave frequency range”**

Przedstawiona do recenzji rozprawa doktorska mgr. Kacpra Brzuszką została przygotowana na Politechnice Wrocławskiej pod kierunkiem dr hab. inż. Andrzeja Janutki, prof. PWr. Praca ma charakter teoretyczny z zakresu fizyki ciała stałego i dotyczy analizy magnetycznych własności dynamicznych nanokompozytowych materiałów opartych na żelazie, kobaltie i niklu. W szczególności praca dotyczy odpowiedzi dynamicznej w/w materiałów na zmienne pole magnetyczne o wysokiej częstotliwości i amplitudzie, co ma duże znaczenie w kontekście potencjalnych zastosowań do rdzeni magnetycznych w konwerterach mocy. Najważniejsze wyniki przedstawione w pracy zostały uzyskane za pomocą metod symulacji mikromagnetycznych ze szczególnym uwzględnieniem modelu RMA (ang. *Random Magnetic Anisotropy*).

Układ i zawartość pracy

Rozprawa doktorska mgr. Kacpra Brzuszką liczy 118 stron, została przygotowana w języku angielskim i zredagowana jest jako zestawienie pięciu publikacji. Jej układ jest poprawny i logiczny. Pierwsza część rozprawy obejmuje wprowadzenie do tematu kompozytów magnetycznych i ich odpowiedzi na zmienne pole, zawierając omówienie najważniejszych relacji i modeli służących do opisu dynamiki materiałów magnetycznych. Następnie Doktorant prezentuje krótkie zestawienie najważniejszych wyników publikacji wchodzących w skład cyklu będącego podstawą rozprawy. Druga, najobszerniejsza część recenzowanej pracy, obejmuje pięć artykułów, z których cztery zostały opublikowane w recenzowanych czasopiśmie z Wykazu Czasopism Naukowych Ministra Nauki i Szkolnictwa Wyższego ogłoszonego dnia 5.01.2024 (dwie prace opublikowane w *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, jedna w *IEEE Transactions on Magnetics*, jedna w *AIP Advances*), natomiast jeden artykuł stanowi preprint umieszczony w bazie SSRN (*The Social Science Research Network*). Wszystkie prace cyklu mają charakter badań teoretycznych, a Doktorant jest pierwszym autorem każdej z nich. Ponadto rozprawa zawiera zwięzłe podsumowanie, jeden załącznik, bibliografię oraz zbiór deklaracji wszystkich współautorów dotyczących ich





udziału w badaniach. Deklaracje te nie wzbudzają żadnych wątpliwości, co do wiodącej roli Doktoranta w przedstawionych publikacjach i **świadczą o jego umiejętności samodzielnego prowadzenia pracy naukowej polegającej na modelowaniu materiałów magnetycznych, analizie wyników, ich dyskusji oraz wyciąganiu wniosków.**

Wstęp pracy (rozdział 1) definiuje cele prowadzonych badań wraz z określeniem stojącej za nimi motywacji. Przedstawione są tu m.in. wybrane problemy związane z konstrukcją rdzeni magnetycznych w mikrokonwerterach mocy. Doktorant słusznie zauważa, że dalsza miniaturyzacja tego typu urządzeń wymusza zwiększenie ich częstotliwości działania ze względu na spadek wartości strumienia indukcji pola magnetycznego dla coraz mniejszych rdzeni. To z kolei wyklucza stosowanie rdzeni metalicznych i wymusza poszukiwanie nowych materiałów, w których straty związane z prądami wirowymi byłyby jak najmniejsze. Proponowanym przez Doktoranta rozwiązaniem są materiały kompozytowe złożone z nanocząstek magnetycznych w matrycy dielektrycznej, nie zawierające pierwiastków ziem rzadkich, ale ze względu na znaczącą zawartość fazy ferromagnetycznej zapewniające dużą wartość magnetyzacji nasycenia. Głównym celem rozprawy było określenie parametrów odpowiedzi w/w materiałów na pole magnetyczne o wysokiej częstotliwości. Cel ten został jasno zdefiniowany, a głównym narzędziem wybranym przez Doktoranta do jego realizacji stały się symulacje numeryczne, pozwalające określić ograniczenia proponowanych materiałów i ich przydatność w zastosowaniach technicznych. Ten fragment pracy przedstawia określenie ważnego problemu naukowego, a narzędzia analizy teoretycznej służące jego realizacji zostały dobrane w sposób właściwy. Są one w szczególności w stanie dostarczyć informacji, których uzyskanie na drodze eksperymentalnej byłoby trudne, czasochłonne i nie zawsze możliwe.

Następne dwa rozdziały wprowadzają niezbędne oznaczenia i wyrażenia matematyczne służące do opisu zależności energetycznych i dynamiki momentów magnetycznych ferromagnetyków i superparamagnetyków. Doktorant dokonał selekcji zagadnień i ograniczył się do podania najważniejszych zależności, kluczowych do zrozumienia stosowanych modeli obliczeniowych. W większości przypadków zależności podane są bez prezentowania szczegółowych i pełnych wyprowadzeń, co jest całkowicie zrozumiałe. Kolejne podrozdziały opisują zagadnienia strat energii przy przemagnesowaniu, ewolucję wektora namagnesowania w zewnętrznym polu magnetycznym, rezonans ferromagnetyczny, dynamiczną podatność magnetyczną, a także wpływ fluktuacji termicznych na dynamikę momentów magnetycznych. Wśród powyższych zagadnień wyróżnia się podrozdział 3.2.3 dotyczący fluktuacji termicznych, który jest w mojej opinii najlepiej zredagowany, przedstawia wysoki walor edukacyjny i stanowi jeden z najważniejszych fragmentów dysertacji.

Oba rozdziały 2 i 3 **prezentują ogólną wiedzę teoretyczną Doktoranta w zakresie magnetyzmu.** Są zredagowane klarownie i zawierają odpowiednią ilość informacji potrzebnych do zrozumienia zagadnień omawianych w cyklu doktorskim. Zastrzeżenia mogą jedynie budzić drobne niedociągnięcia, do których można zaliczyć:

- Błędny wykładnik w pierwszym wzorze na stronie 13.





- Błędne warunki zbieżności parametru  $x_p$  podane na stronie 13.
- Pomylenie wersora  $\hat{j}$  z wersorem  $\hat{k}$  w zależności opisującej pole demagnetyzacji  $H_d$  na stronie 14.
- Brak opisu osi  $y$  na rysunku 3.1.
- Brak opisu transformacji zaprezentowanych na rysunku 3.3. Nie jest również jasne, jakim zmianom odpowiadają oraz czego symbolem są uśmiechnięte i smutne twarze przedstawione na w/w rysunku.
- Brak opisu krzywych przedstawionych na wykresie 3.2. Nie jest jasne, jakim parametrom odpowiadają.

W kolejnej, najobszerniejszej części dysertacji, przedstawiono pięć publikacji [P1] – [P5], które omówione zostaną w osobnej części niniejszej recenzji. Dysertacja zakończona jest krótkim podsumowaniem, które zawiera najważniejsze wnioski wynikające z przedstawionego cyklu publikacji, a także załącznikiem zawierającym wprowadzenie do tematyki wytwarzania kompozytów magnetycznych. Tę część pracy uważam za bardzo cenną, gdyż stosunkowo rzadko zdarza się, aby dysertacje o charakterze teoretycznym zawierały tak bezpośrednie odniesienie do metod eksperymentalnych. Spośród szeregu technik eksperymentalnych Doktorant omówił nieco szerzej dwie: litografię z wykorzystaniem procesu nanostemplowania (ang. *nanoimprint lithography*) oraz litografię z wykorzystaniem kopolimerów blokowych (ang. *block-copolymer lithography*). Wybór ten jest zrozumiały ze względu na wysoki stopień rozwoju powyższych technik i możliwość ich wykorzystania do masowej produkcji nanoukładów magnetycznych. Pewne zastrzeżenia może jedynie budzić skrótowe opisanie segregacji polimerów. W szczególności nie jest jasne, jak słaba lub mocna segregacja może posłużyć do wytwarzania układów kompozytowych złożonych z nanocząstek magnetycznych zanurzonych w materiałach takich jak  $Al_2O_3$ ,  $SiO_2$  lub  $MgF_2$ , które rozważane są np. w pracy [P1].

#### Ocena i zawartość cyklu publikacji

Praca [P1] opisuje numeryczne obliczenia odpowiedzi dynamicznej czterech nanokompozytów, w których ferromagnetyczne sześciennie cząstki umieszczone zostały w periodycznej sieci, pomiędzy którymi znajdował się materiał diamagnetyczny i dielektryczny. Co istotne, faza ferromagnetyczna bazuje na kobalcie i żelazie, a nie na pierwiastkach ziem rzadkich, co ma kluczowe znaczenie w kontekście zastosowań, ze względu na niską cenę i łatwy dostęp. Dla kompozytów wyznaczone zostały pętle histerezy magnetycznej, składowe rzeczywiste i urojone przenikalności magnetycznej w funkcji częstotliwości, zmiany głównych składowych magnetyzacji w czasie, a także zmiany energii Zeemana w czasie. Za jeden z ważniejszych wyników tej publikacji uznaję oszacowanie strat energii układu poprzez wyznaczenie stosunku składowych namagnesowania  $m_z/m_y$ . Bardzo ciekawa jest również analiza nieliniowego modu rotacyjnego wektora magnetyzacji w układzie  $(Fe_{65}Co_{35})_{0.6}(Al_2O_3)_{0.4}$ , który pozwala na uzyskanie stosunkowo niskich strat energii oraz zachowanie dynamicznej stabilności struktury domenowej. Porównanie czterech materiałów pozwoliło wskazać ograniczenia i zalety każdego z nich. Praca ta w mojej opinii jest najciekawszą pracą całego cyklu. Przedstawiony materiał badawczy należy uznać





za bogaty i różnorodny. Publikacja ta została już dostrzeżona przez innych naukowców i zacytowana co najmniej 6 razy (bez autocytowań).

Praca [P2] kontynuuje zagadnienia poruszane w pracy [P1] z tą różnicą, że zamiast nanocząstek sześciennych rozważa ona periodycznie uporządkowane sieci nanocząstek kulistych, a zamiast badania kompozytów o różnej stechiometrii z różnymi materiałami dielektrycznymi, Doktorant skupia się na obliczeniach dla cząstek  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  o średnicy 5 nm zanurzonych w jednym rodzaju dielektryka. Głównym parametrem przyjętym w obliczeniach była odległość między nanocząstkami  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$ . Najważniejszym wynikiem przedstawionym w pracy są czasowe przebiegi zmian składowych namagnesowania układu w funkcji temperatury oraz częstotliwości zewnętrznego pola magnetycznego. Pokazano, że w zależności od odległości między nanocząstkami kompozyt może zachowywać się jak superparamagnetyk (dla małej zawartości fazy magnetycznej) albo jak szkło spinowe SSG (ang. *Super Spin Glass*) dla zawartości fazy magnetycznej wynoszącej 30%. Przejście pomiędzy tymi stanami magnetycznymi jest ciekawym wynikiem zasługującym w mojej opinii na dalsze badania. Publikacja [P2] pokazuje, że istotne w analizie kompozytów magnetycznych jest uwzględnienie oddziaływań dipolowych, a także demonstrowane jak temperatura wpływa na magnetyczną odpowiedź układu.

Publikacja [P3] analizuje układ sferycznych nanocząstek złożonych z żelaza oraz magnetytu, które są obecnie najpopularniejszymi materiałami używanymi do wytwarzania nanocząstek magnetycznych. Sprawia to, że analiza ich odpowiedzi dynamicznej w reżimie pól magnetycznych wysokiej częstotliwości jest dobrze uzasadniona. Modelowany kompozyt posiada podobną strukturę do tego z pracy [P2], aczkolwiek zastosowano zmienną średnicę nanocząstek mieszczącą się w zakresie 5 nm – 15 nm. Istotną różnicą jest także występowanie mocnej kubicznej anizotropii magnetokrystalicznej. Wyniki zawarte w publikacji pokazują, że stabilizacja odpowiedzi dynamicznej znacząco zależy od wielkości nanocząstek, co ma bezpośredni związek ze wzrostem całkowitego momentu magnetycznego dla dużych cząstek, który z kolei wpływa na zwiększoną siłę oddziaływań magnetostatycznych. Obliczenia wskazują także, że dla małych wielkości cząstek fluktuacje termiczne destabilizują oscylacje momentów magnetycznych w kompozycie opartym na magnetycie, co jest niekorzystne z punktu widzenia zastosowań. Problem ten może być jednak rozwiązany poprzez zwiększenie objętości (rozmiarów) nanocząstek.

W pracy [P4], podobnie jak w pracach [P1] i [P2], rozważane są układy z złożone  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$ , jednak o innej strukturze geometrycznej. Przyjęto, że materiał magnetyczny tworzy okrągłe płaskie wyspy o średnicy od 5 nm do 12 nm rozmieszczone w sieci trójkątnej na niemagnetycznym podłożu. Takie ujęcie problemu wymusza uwzględnienie dodatkowej anizotropii związanej z kształtem wysp magnetycznych, która modyfikuje odpowiedź dynamiczną układu. Autorzy publikacji rozważyli układ poddany działaniu pola magnetycznego o dwóch wzajemnie prostopadłych składowych: stałej i szybko zmiennej, co pozwoliło na uzyskanie rezonansu ferromagnetycznego. Głównym celem pracy było sprawdzenie, czy efekt ten może być przydatny w poprawieniu parametrów odpowiedzi dynamicznej. Stwierdzono, że stała składowa pola magnetycznego korzystnie wpływa na





stabilizację tej odpowiedzi w temperaturze pokojowej. Przetawione analizy dodatkowo pokazały, że sieć płaskich wysp  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  daje tak samą mocną odpowiedź dynamiczną jak układ nanocząstek rozważany w pracach [P1] i [P2].

Praca [P5], ze względu na rozważany materiał jakim jest antyferromagnetyk NiO, jest najbardziej odrębną pracą z przedstawionego cyklu doktorskiego, jednakże postawiony w niej problem badawczy, a także użyte metody i przedstawione analizy dobrze korespondują z pozostałymi czterema publikacjami. Z punktu widzenia rozważanych zastosowań wybór tlenku niklu jest dobrze uzasadniony ze względu na jego niskie przewodnictwo, niską cenę i wysoką temperaturę Neela. Ze względu na rezonans antyferromagnetyczny występujący w tym materiale na bardzo wysokich częstotliwościach, NiO jest także dobrym kandydatem do zastosowań w urządzeniach bardzo wysokiej częstotliwości wynoszącej 100 GHz i wyższej. Materiał został zasymulowany jako układ składający się z wielu domen antyferromagnetycznych, co jest bliskie rzeczywistej strukturze tego typu materiałów. Główne wyniki pracy prezentują czasowe przebiegi składowych namagnesowania w funkcji częstotliwości i amplitudy zewnętrznego pola magnetycznego. Pokazano, że tlenek niklu wykazuje odpowiednio stabilną i mocną odpowiedź dynamiczną, co predestynuje go do zastosowań w urządzeniach spintronicznych i konwerterach mocy o dużej częstotliwości.

**Przedstawiona powyżej analiza publikacji wchodzących w skład rozprawy doktorskiej pozwala stwierdzić, że stanowią one grupę powiązanych tematycznie artykułów naukowych, które przedstawiają oryginalne rozwiązanie problemu naukowego.** Wszystkie publikacje prezentują wysokie kompetencje obliczeniowe Doktoranta w badaniach nanomateriałów magnetycznych, a wyniki i analizy zaprezentowane są w sposób rzetelny i zgodny ze standardami pracy naukowej.

Podczas czytania omawianych publikacji nasunęły mi się również dodatkowe pytania i zwracam się z prośbą do Doktoranta o odpowiedź na nie podczas obrony.

1. Czy jest możliwe wyznaczenie współczynnika SAR (ang. *specific absorption ratio*) dla materiałów symulowanych w pracach [P1], [P2], [P3] i [P4]? Jak temperatura kompozytów będzie rosła z czasem oraz częstotliwością i amplitudą zewnętrznego pola magnetycznego?
2. Czy Doktorant szacował jaki jest stosunek energii oddziaływania dipolowego do energii wymiany dla fazy magnetycznej rozważanych kompozytów? W szczególności byłoby to interesujące dla materiałów przedstawionych w publikacjach [P1] oraz [P2], gdzie wydaje się, że oddziaływania dipolowe mocno wpływają na strukturę magnetyczną materiału.
3. Jak dobierane były proporcje fazy magnetycznej do niemagnetycznej w symulowanych kompozytach? Prace wchodzące w skład cyklu pokazują, że skład kompozytu wybieranego do obliczeń był określany z dokładnością do 1%. Czy jest to uwarunkowane jakimiś wcześniejszymi badaniami eksperymentalnymi lub teoretycznymi?





4. Czy Doktorant mógłby skomentować dobór parametrów magnetycznych w symulacjach przedstawionych w pracy [P1]? W szczególności jak należy rozumieć i co oznaczają wartości magnetyzacji nasycenia  $M_s$  dla materiałów diamagnetycznych  $MgF_2$ ,  $Al_2O_3$  i  $SiO_2$ ? Na podstawie jakich analiz zostały przyjęte i dlaczego dla materiału  $Al_2O_3$  różnią się w zależności od składu kompozytu? Dlaczego dla kompozytu  $(Fe_{65}Co_{35})_{0.6}(Al_2O_3)_{0.4}$  wartość dodatkowej stałej anizotropii  $K$  jest rzędu wielkości mniejsza niż dla podobnego kompozytu  $(Fe_{65}Co_{35})_{0.75}(Al_2O_3)_{0.25}$ ?

#### Podsumowanie i ocena końcowa

Przedstawione w pracy wyniki i analizy dobrze wpisują się w obecne trendy badań materiałów magnetycznych. Podjęty został aktualny temat badawczy, a mgr Kacper Brzuszek uzyskał szereg interesujących wyników. Pomimo że dysertacja ma charakter teoretyczny, pozostaje ona w bliskiej relacji z doświadczeniem i odnosi się do inżynierii nowoczesnych materiałów magnetycznych. Docenić należy również wykorzystanie przez Doktoranta różnych środowisk symulacyjnych, poczynając od tych starszych takich jak OOMF, a kończąc na najnowszych, takich jak pakiet Boris. W mojej opinii szczególnie interesującym fragmentem dysertacji jest publikacja [P1] zawierająca bogaty i ciekawy materiał obliczeniowy, na podstawie którego możliwe jest prowadzenie dalszych badań teoretycznych. Przede wszystkim jednak prezentuje ona cenne przewidywania dla fizyków eksperymentalnych i inżynierów materiałowych, dążących do syntezy nanokompozytowych materiałów magnetycznych.

Drobne uchybienia redakcyjne lub nieścisłości pojawiające się w pracy nie zmieniają mojej opinii o rzetelności Autora. Dysertacja napisana jest naukowym językiem i prezentuje dużą wiedzę teoretyczną Doktoranta w zakresie poruszanej tematyki. Przedstawione wyniki świadczą o umiejętności samodzielnego prowadzenia pracy naukowej polegającej na modelowaniu materiałów magnetycznych, analizie wyników, ich dyskusji oraz wyciąganiu wniosków. Konkludując uważam, że rozprawa doktorska mgr. Kacpra Brzuska pt. „Magnetic response of composites of magnetic nanoparticles in dielectric matrices to the alternating field of the microwave frequency range” zawiera wartościowe wyniki, prezentuje oryginalne rozwiązanie problemu naukowego i wnosi istotny wkład w rozwój nanomagnetyzmu, a w szczególności w zrozumienie odpowiedzi nanostrukturalnych kompozytów magnetycznych na zmienne pole magnetyczne. **Rozprawa spełnia wszystkie kryteria stawiane kandydatom do stopnia doktora w Ustawie Prawo o Szkolnictwie Wyższym i Nauce z dnia 20 lipca 2018 r. (Dz.U. 2023 poz. 742 z późn. zm.) i wnoszę o dopuszczenie pracy do obrony, a Autora do dalszych etapów przewodu doktorskiego.**

*Mieczysław Knapik*