

Warszawa, dn. 13 maja 2024 r.

prof. dr hab. Andrzej Wawro
Instytut Fizyki PAN

Recenzja rozprawy doktorskiej mgra inż. Kacpra Brzuszką pt.:
Magnetic response of composites of magnetic nanoparticles in dielectric matrices to the alternating field of the microwave frequency range

Przedmiot recenzji

Niniejsza recenzja poświęcona jest rozprawie doktorskiej autorstwa mgra inż. Kacpra Brzuszką pt.: *Magnetic response of composites of magnetic nanoparticles in dielectric matrices to the alternating field of the microwave frequency range*. Praca ta została wykonana w dziedzinie nauk ścisłych i przyrodniczych, w dyscyplinie nauk fizycznych na Politechnice Wrocławskiej pod opieką naukową dra hab. inż. Andrzeja Janutki, prof. PWr. Niniejszą ocenę przygotowałem zgodnie z wymogami Ustawy *Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce* z dnia 20 lipca 2018 r. (art. 187).

Zagadnienie rozprawy

W dobie postępującej miniaturyzacji konwertery mocy muszą operować w zakresie coraz wyższej częstotliwości. Ich istotnym elementem konstrukcyjnym są rdzenie magnetyczne. W przypadku, gdy wykonane są one z litego metalu problemem staje się strata mocy rosnąca gwałtownie wraz z częstotliwością. Głównym czynnikiem odpowiedzialnym za te straty są indukowane prądy wirowe. Obiecującym rozwiązaniem jest zastosowanie materiałów kompozytowych składających się z magnetycznych nanocząstek osadzonych w nieprzewodzącej dielektrycznej matrycy. Odpowiedni dobór materiału cząstek, ich rozmiaru i stopnia wypełnienia pozwala na modyfikację parametrów opisujących magnetyczną dynamikę układu w szerokim zakresie i znalezienie optymalnej konfiguracji, która efektywnie redukuje wspomniane straty.

Cel rozprawy

Temu właśnie zagadnieniu poświęcona jest recenzowana rozprawa. Jej autor postawił sobie za cel wyznaczenie parametrów wysokoczęstotliwościowej odpowiedzi struktur kompozytowych poddanych oddziaływaniu z polem magnetycznym o częstotliwości mikrofalowej i dużej amplitudzie. Z wykorzystaniem symulacji numerycznych analizowane są układy różniące się: rodzajem materiału magnetycznego, anizotropią magnetyczną nanocząstek, ich odpornością na fluktuacje termiczne oraz wzajemnym oddziaływaniem. Parametry materiałowe przyjmowane do obliczeń charakteryzują rzeczywiste stopy lub związki, które nie zawierają drogich i coraz trudniej dostępnych ziem rzadkich. W związku z tym recenzowana rozprawa posiada zarówno charakter

poznawczy (badania podstawowe), aplikacyjny (zastosowania praktyczne) oraz ekonomiczny (redukcja kosztów wytworzenia potencjalnych urządzeń).

Układ rozprawy

Rozprawa doktorska o długości 118 stron została przygotowana w języku angielskim w postaci zbioru pięciu opublikowanych artykułów współautorstwa mgr inż. Kacpra Brzuska, które poprzedza opis wprowadzający w tematykę podejmowanych badań. Rozpoczyna ją strona tytułowa i krótkie podziękowania najbliższym, po których następują streszczenia w języku polskim i angielskim. W dalszej kolejności pojawia się spis treści oraz lista pięciu publikacji stanowiących podstawę rozprawy i czterech innych współautorstwa doktoranta, dopełniających jego dorobek publikacyjny. Merytoryczna część rozprawy podzielona jest na cztery części.

Pierwsza z nich, *Wprowadzenie*, składa się z czterech rozdziałów, z których pierwszy wyjaśnia motywację podjętych badań, a dwa kolejne opisują podstawy zjawisk fizycznych analizowanych w rozprawie: podstawową charakterystykę materiałów kompozytowych poddanych działaniu pola magnetycznego o wysokiej częstotliwości (Rozdział 2) oraz mikroskopowy opis dynamiki namagnesowania (Rozdział 3). Czwarty rozdział zawiera krótkie opisy zawartości pięciu prac, stanowiących podstawę merytoryczną rozprawy.

Część druga zawiera wydruki pięciu prac doktorskich.

W trzeciej części znajdują się: posumowanie uzyskanych wyników i wnioski, podziękowania dla osób współpracujących oraz oświadczenia dwóch współautorów deklarujące ich wkład włożony w powstanie prac doktorskich.

Część czwartą stanowi Dodatek A poruszający fizyczne i technologiczne aspekty nanokompozytów: ich zróżnicowane potencjalne zastosowania (konwertery mocy, absorbery, materiały na rdzenie pracujące w wysokich częstotliwościach), wpływ koncentracji nanocząstek i ich rodzaju na właściwości magnetyczne i transportowe, metody wytwarzania kompozytów i podstawowe problemy z tym związane.

Rozprawę kończy bibliografia zawierająca 124 pozycje oraz spis rysunków.

Prace doktorskie

Podstawę merytoryczną rozprawy stanowi pięć opublikowanych prac, wylistowanych poniżej, oznaczonych symbolami P1 – P5. Są to prace teoretyczne i opisują dynamiczne właściwości magnetycznych różnych nanokompozytów (o parametrach materiałów rzeczywistych) uzyskane z mikromagnetycznych symulacji numerycznych opartych na równaniu Landaua–Lifshitz–Gilberta (LLG). Ich zasadniczą wspólną tematyką jest odpowiedź magnetyczna rozważanych kompozytów na wzbudzenie polem magnetycznym o wysokiej częstotliwości z zakresu GHz.

P1. High-frequency magnetic response of superferromagnetic nanocomposites

Kacper Brzuszek, Andrzej Janutka

Journal of Magnetism and Magnetic Materials **543** (2022) 168608.

P2. High-frequency magnetic response of superparamagnetic composites of spherical Fe₆₅Co₃₅ nanoparticles

Kacper Brzuszek, Caroline A. Ross, Andrzej Janutka

Journal of Magnetism and Magnetic Materials **573** (2023) 170651.

P3. High-frequency magnetic response of superparamagnetic composites of spherical Fe and Fe₃O₄ nanoparticles

Kacper Brzuszek, Caroline A. Ross, Andrzej Janutka

Platforma SSRN: <https://ssrn.com/abstract=4709514>.

P4. High-Frequency Magnetic Response of Arrays of Planar Fe₆₅Co₃₅ Nanodots: Effects of Bias Field and Thermal Fluctuations

Kacper Brzuszek, Caroline A. Ross, and Andrzej Janutka

IEEE Transactions on Magnetics **59** (2023) 7100306.

P5. High-frequency magnetic response of crystalline and nanocrystalline antiferromagnetic NiO

Praca **P1** poświęcona jest warstwowym kompozytom superferromagnetycznym (cząstki FeCo lub Co w matrycy Al₂O₃, SiO₂ lub MgF₂). Cząstki te o kształcie kubicznym charakteryzują się: silnym namagnesowaniem nasycenia, wysoką opornością i brakiem wewnętrznej struktury domenowej, które prowadzą do wytworzenia silnego strumienia pola magnetycznego przy niskiej stracie mocy. W kompozycie zaobserwowano oddziaływanie długozasięgowe, prowadzące do wytworzenia struktury domenowej. Podjęte symulacje pozwoliły na określenie przestrzennego rozkładu oscylacji namagnesowania pod wpływem pola wzbudzającego. Autorzy spodziewali się istotnych różnic w odpowiedzi rezonansowej dla różnych kompozytów skorelowanych z kształtem statycznej pętli histerezy. Magnetyczna odpowiedź na zmienne pole przyłożone prostopadle do osi łatwej anizotropii jest podobna jak dla materiału ferromagnetycznego. W kolejnych cyklach odpowiedzi pozycja ścian domenowych jest stabilna lub oscyluje. Na amplitudę dynamicznej odpowiedzi i przenikalności magnetycznej istotny wpływ wywiera wielkość międzycząsteczkowego sprzężenia. W przypadku warstwy z cząsteczkami Co w matrycy MgF₂ przy pewnej wielkości amplitudy pola kompozyt staje się magnetycznie niestabilny wskutek zaniku stanu superferromagnetycznego i struktury domenowej. Odpowiada za to silna lokalna anizotropia nanocząstek. Zaobserwowano również wyższą stabilność dynamicznej odpowiedzi kompozytów w przypadku pól obracających się w płaszczyźnie próbki w porównaniu do pól o liniowej polaryzacji, co przypisano mobilności ścian domenowych zależnej od ich długości i wielkości tłumienia Gilberta.

Efekt dwóch niższych koncentracji sferycznych cząstek Fe₆₅Co₃₅ o losowo zorientowanej anizotropii był analizowany w pracy **P2**. Rzadsze rozmieszczenie cząstek powoduje ich słabsze wzajemne oddziaływania natury dipolowej, wskutek czego system

kompozytowy przyjmuje właściwości superparamagnetyczne. Z kolei niższa anizotropia magnetyczna wzmacnia wpływ fluktuacji termicznych, które obniżają stopień uporządkowania magnetycznego układu charakteryzowanego temperaturą blokowania. Pokazano, że oddziaływania międzycząsteczkowe istotnie wpływają na wysokoczęstotliwościową dynamikę, która stabilizuje system w wysokich temperaturach. Porównana została czasowa odpowiedź kompozytu w przypadku występowania lub braku oddziaływa dipolowych. Brak tych oddziaływań prowadzi do chaotycznej, słabo zdefiniowanej odpowiedzi układu. Z kolei w przypadku ich występowania wymagana była relatywnie duża amplituda pola wymuszającego. W pracy analizowano również odpowiedź układu w obecności silnego statycznego pola magnetycznego zorientowanego poprzecznie do pola wymuszającego. Przyłożone pole statyczne wzmacnia amplitudę wzbudzenia temperaturze równej zero, natomiast w wyższych temperaturach istotnie redukuje szумы termiczne.

Kontynuacja omówionych wcześniej badań stanowi treść pracy **P3**, w której przedstawiona jest odpowiedź superparamagnetycznego układu na silne pola wzbudzające. Założona silna kubiczna anizotropia magnetokrystaliczna sferycznych cząstek Fe i Fe₃O₄ znacznie eliminuje fluktuacje termiczne. Cząstki magnetytu charakteryzowały się niższym nasyceniem i w konsekwencji – słabszymi oddziaływaniami dipolowymi. Przeprowadzona analiza pokazuje zależność odpowiedzi dynamicznej od rozmiaru cząstek magnetytu wskutek zmieniającej się siły oddziaływań wzajemnych – rosnący rozmiar cząstek poprawia stabilność wzbudzeń. Powyżej pewnej granicy (ze względu na silniejsze oddziaływania magnetostatyczne) pojawia się niekorzystne zjawisko otwarcia dynamicznej pętli histerezy sygnalizujące wzrost utraconej mocy.

W pracy **P4** rozważano dynamiczne właściwości superparamagnetycznego kompozytu zawierającego periodycznie rozmieszczone magnetyczne elementy o składzie Fe₆₅Co₃₅. Ich założony płaski kształt wymusza płaszczyznową anizotropię, która z kolei może wzmacniać odpowiedź rezonansową w obecności pola poprzecznego. Rozważano zarówno przypadkową oraz uporządkowaną orientację namagnesowania nanodysków. Z kolei rozmiar dysków decyduje o ich odporności na zaburzenia termiczne. Założeniem opisanych badań było sprawdzenie czy rezonans ferromagnetyczny wzmocni odpowiedź dynamiczną tego układu. Dla warstwowej konfiguracji magnetycznych dysków zaobserwowano rezonansowy charakter odpowiedzi oraz znaczne przesunięcie częstotliwości rezonansowej w porównaniu do jednorodnej warstwy o identycznym składzie. Podobnie jak w poprzednim przypadku, zgodnie z przewidywaniem, poprzeczne pole magnetyczne wzmacnia odpowiedź magnetyczną i stabilizuje ją w temperaturze pokojowej, nadając jej jednocześnie sinusoidalny charakter. W niskich temperaturach istotnym czynnikiem determinującym odpowiedź układu jest anizotropia, natomiast w wyższych ujawnia się wpływ rozmiaru cząstek.

Ostatnia praca doktorska, **P5**, analizowała istotnie odmienny magnetyczny składnik kompozytu jakim są antyferromagnetyczne nieprzewodzące i stabilne magnetycznie cząstki tlenku niklu, NiO. Zaproponowany został mikromagnetyczny model układu uwzględniający m. in. anizotropię magnetokrystaliczną oraz strukturę domenową.

Symulacje numeryczne zostały przeprowadzone dla częstotliwości aż do 100 GHz. Liniowy charakter odpowiedzi uzyskano dla pól o amplitudzie sięgającej 200 mT. Wartość kluczowego parametru odpowiedzialnego za przekazanie mocy (ang.: *performance factor*) jest porównywalna z kompozytami superferromagnetycznymi.

Podsumowanie zawartości rozprawy

Opisane w rozprawie wyniki stanowią oryginalne rozwiązanie problemu naukowego, jakim jest określenie dynamicznej odpowiedzi magnetycznych materiałów kompozytowych na wzbudzające pole magnetyczne o częstotliwości mikrofalowej. Należy podkreślić, że analizowane zagadnienie nie nosi w sobie jedynie pierwiastka czysto poznawczego, ale ma istotny potencjał aplikacyjny, np. w dziedzinie przetwarzania mocy. W dobie postępującej miniaturyzacji przetworniki pracują w zakresie coraz wyższych częstotliwości. Powoduje to wzrost straty przekazywanej mocy ze względu na niekorzystne właściwości materiału jakimi są: histereza magnetyczna i indukcja prądów wirowych. Badane materiały kompozytowe w istotnym stopniu mogą ograniczyć lub wręcz wyeliminować te niepożądane właściwości. W przedstawionej rozprawie doktorant analizuje różne kompozyty składające się z magnetycznych nanocząstek rozmieszczonych w izolującej matrycy. Właściwości tych kompozytów są kontrolowane poprzez: dobór różnych materiałów, z których wykonane są nanocząstki (metaliczny ferromagnetyczny Co, Fe stop $Fe_{65}Co_{35}$, ferrimagnetyczny magnetyt Fe_3O_4 , antyferromagnetyczny izolator NiO), rozmiar i kształt nanocząstek (anizotropia, odporność na fluktuacje termiczne), koncentrację (wielkość sprzężeń pomiędzy nanocząstkami magnetycznymi). W efekcie tych modyfikacji otrzymano nanokompozyty o zróżnicowanych właściwościach globalnych: superferromagnetyki, superparamagnetyki i antyferromagnetyki niewytwarzające pola magnetostaticznego. Dynamiczna odpowiedź materiałów kompozytowych była analizowana zarówno w funkcji kierunku, amplitudy i częstotliwości pola wzbudzającego oraz temperatury. Zawartość merytoryczna prac doktorskich dowodzi, że założone przez doktoranta cele zostały osiągnięte. Uzyskane wnioski można określić w następujący sposób z uwzględnieniem poszczególnych magnetycznych rodzajów kompozytów:

1. Odpowiedź warstwowego kompozytowego materiału superferromagnetycznego na mikrofalowe dynamiczne pole magnetyczne podobna jest do odpowiedzi jednorodnych ferromagnetyków. Jednak nieliniowe efekty dynamicznej odpowiedzi silnie zależą od struktury kompozytu.
2. Amplituda przenikalności magnetycznej superparamagnetycznych kompozytów w zakresie mikrofalowym może być kilkukrotnie wyższa niż przenikalność magnetyczna próżni. Właściwość ta pozwala na potencjalne ich zastosowanie w przetwornikach mocy.
3. Współczynnik wydajności (iloczyn podatności magnetycznej i częstotliwości) antyferromagnetycznego izolatora w zakresie sub-THz może osiągnąć wartości porównywalne z tymi dla układu ferromagnetycznego. W tym kontekście antyferromagnetyki mogą znaleźć zastosowanie jako materiały magnetyczne na

rdzenie w przetwornikach pracujących w zakresie ekstremalnie wysokich częstotliwości.

Licznie cytowana literatura obejmująca szeroki zakres czasowy pozwala na stwierdzenie, że doktorant posiada dobre rozeznanie w badaniach prowadzonych przez inne zespoły. Również zwięzły, ale wyczerpujący opis teorii zagadnień fizycznych wprowadzający do tematyki rozprawy dowodzi, że doktorant wykazuje się gruntownym zrozumieniem fizyki ogólnej i analizowanych zjawisk fizycznych. Recenzowana rozprawa doktorska ma charakter obliczeniowy. Jej autor posługiwał się trzema różnymi pakietami mikromagnetycznych (OOOMMF, MuMax³ i BORIS) służącymi do symulacji trójwymiarowej dynamiki namagnesowania w oparciu o równanie LLG. Dla każdego materiału analizowanego w poszczególnych pracach konstruował modele opisujące jego właściwości. Na tej podstawie można uznać, że doktorant wykazuje się umiejętnością samodzielnego prowadzenia pracy naukowej.

Cztery prace doktorskie zostały opublikowane w recenzowanych czasopismach o zasięgu międzynarodowym znajdujących się na liście *Journal Citation Reports (JCR)*. Czasopisma mają charakter specjalistycznych z grupy o dobrych parametrach bibliometrycznych: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* (5y impact factor: 2,5; punkty MNSzW: 100), *IEEE Transactions on Magnetics* (2,0; 70), *AIP Advances* (1,6; 70). Piąta praca została zamieszczona na platformie publikacyjnej *Social Science Research Network (SSRN)* wydawnictwa Elsevier. Prace te są dwu- lub trójautorskie i we wszystkich doktorant jest pierwszym współautorem. Pozycja ta oraz treść oświadczeń pozostałych dwóch współautorów zamieszczonych w rozprawie dowodzi wkładu doktoranta w powstanie tych prac.

Uwagi i pytania

Edytorska strona rozprawy nie budzi moich większych zastrzeżeń. Układ rozprawy jest logiczny – jej tekst jest podzielony jest na rozdziały sukcesywnie wprowadzające czytelnika w poruszane zagadnienia. Rozprawa napisana jest dobrym językiem angielskim. Rysunki mają prostą, czytelną formę. Ich lokalizację w tekście rozprawy ułatwia lista rysunków zawarta w jej końcowej części. Nie znalazłem istotniejszych słabości. Do drobnych uchybień zaliczyłbym poniżej wymienione, które jednak nie obniżają mojej pozytywnej oceny rozprawy:

1. W tekście opisu pracy P3 brakuje podkreślenia, że zależności rozmiarowe analizowane są tylko dla cząstek magnetytu (informacja ta podana tylko przy opisie rysunków)
2. Pojawia się niejasność jaki materiał jest opisany w pracy P5 w kontekście badań przedstawionych we wcześniejszych rozdziałach i tytułu pracy. Cytat z krótkiego opisu pracy w rozprawie: “The simulated model can also be treated as a model of superantiferromagnet, since antiferromagnetic **particles** practically do not interact with each other (their demagnetization field is zero)”. Obecność **nanocząstek** sugeruje również Rys. 2. Abstrakt: “Performing micromagnetic

simulations, we study the efficiency of response of **bulk and polycrystalline nickel oxide (NiO)** to high-frequency (up to 100 GHz) magnetic fields”.

3. Wystąpiła nieścisłość związana z pracą P5. W opisie pracy w rozprawie: “...the product of frequency and magnetic susceptibility of a multi-domain antiferromagnet can reach values comparable to those achievable for **superparamagnetic systems**”. Cytat z artykułu: “...the achievable product of susceptibility and frequency (“performance factor”) appears to be relatively high, comparable to that of previously considered **superferromagnetic systems**”.

W ramach dyskusji wyników, która będzie prowadzona w czasie obrony rozprawy poprosiłbym o komentarz doktoranta dotyczący poniżej wymienionych kwestii:

1. Cytat z pracy P1: “However, a leakage of a small amount of the spin from the nanoparticles into the dielectric matrix results in the formation of a continuous system of ferromagnetically-interacting magnetic moments” Cytat z pracy P2: “...which makes the interparticle tunneling barriers narrow and results in unwanted particle clustering”. Sugerują one sprzężenia za pośrednictwem elektronów tunelujących przez izolującą matrycę. Ze względu na istotną rolę sprzężeń w magnetycznym uporządkowaniu kompozytu, proszę o omówienie ich rodzajów, przyjętych dla poszczególnych materiałów kompozytowych.
2. Rodzaj matrycy, w której znajdują się nanocząstki magnetyczne, zdefiniowano jedynie w pracy P1. W pozostałych artykułach nie podano jej rodzaju. Czy należy rozumieć, że matryca pełni rolę jedynie doskonałego izolatora, którego pozostałe właściwości nie ogrywają istotnej roli?
3. Nie jest dla mnie jasne sformułowanie zawarte w pracy P2: „Because the particles are closely packed, the effect of surface anisotropy is neglected”. Proszę o komentarz, jakiej anizotropii powierzchniowej uwaga ta dotyczy.

Sentencja końcowa

Rozprawa doktorska mgra inż. Kacpra Brzuszka pt.: *Magnetic response of composites of magnetic nanoparticles in dielectric matrices to the alternating field of the microwave frequency range* wykonana w dziedzinie nauk ścisłych i przyrodniczych i w dyscyplinie nauk fizycznych, spełnia wszystkie wymogi formalne zapisane w Ustawie *Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce* z dnia 20 lipca 2018 r (art. 187). Mając na względzie zarówno kontekst merytoryczny jak i formalny, wnioskuję o dopuszczenie mgra inż. Kacpra Brzuszka do dalszych etapów postępowania w celu nadania mu stopnia doktora nauk fizycznych.