

На правах рукописи



ШИРЯЕВ АРТЕМ ОЛЕГОВИЧ

**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ СВЧ МАГНИТНЫХ
СВОЙСТВ КОМПОЗИТНЫХ МАТЕРИАЛОВ ВО ВНЕШНЕМ
ПОСТОЯННОМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ**

1.3.13 – Электрофизика, электрофизические установки

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва – 2022

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте теоретической и прикладной электродинамики Российской академии наук (ИТПЭ РАН)

Научный руководитель:

Розанов Константин Николаевич

д.ф.-м.н., директор ИТПЭ РАН, г. Москва

Официальные оппоненты:

Костишин Владимир Григорьевич

д.ф.-м.н., действительный член Академии инженерных наук РФ, заведующий кафедрой технологии материалов электроники Национального исследовательского технологического университета «МИСиС», г. Москва

Бузников Никита Александрович

д.ф.-м.н., главный научный сотрудник научно-исследовательского института природных газов и газовых технологий – Газпром ВНИИГАЗ, Московская область, г.о. Ленинский

Ведущая организация:

ФГБОУ ВО «Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова», г. Москва

Защита диссертации состоится 7 сентября 2022 г. в 11 часов 00 мин. на заседании диссертационного совета 99.1.044.02 на базе ИТПЭ РАН при участии Федерального государственного бюджетного учреждения науки Объединенного института высоких температур Российской академии наук по адресу: 410012, г. Москва, ул. Ижорская, д. 13, стр. 2, экспозал.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИВТ РАН.

Автореферат разослан «_____» _____ 2022 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета 99.1.044.02,
доктор физико-математических наук



Дорофеенко А.В.

Общая характеристика работы

Актуальность темы. Композитные материалы, содержащие ферромагнитные (ФМ) частицы, обладают сочетанием перспективных для применений магнитных, электрических и механических свойств и широко используются в СВЧ технике, например, в качестве магнитодиэлектрических подложек для антенн, для создания радиопоглощающих покрытий или при решении проблем электромагнитной совместимости.

Исследованию СВЧ свойств композитных материалов с ФМ порошками посвящено огромное количество публикаций, см., напр., обзор [1]. Интерес к этой теме связан как с техническими применениями этих материалов, так и с возможностью получения информации о структуре и свойствах ФМ частиц.

Действительная и мнимая части эффективной магнитной проницаемости $\mu = \mu' - i\mu''$ сложным образом связаны как с микроструктурой композита, так и со свойствами составляющих его материалов. Динамические магнитные свойства материалов определяются, в основном, естественным ферромагнитным резонансом (ФМР), движением доменных границ и скин-эффектом, за счет которых формируются частотные пики магнитных потерь, а также магнитной или структурной неоднородностью материала, влияние которой приводит к сдвигу, расщеплению, уширению или изменению соотношения амплитуд этих пиков. В частности, наличие магнитной структуры может приводить к расщеплению ФМР и появлению доменных мод [2].

Разделение вкладов различной природы является трудной задачей, т.к. параметры включений (размер, форма, проводимость, поле магнитной анизотропии), обычно, если и известны, то очень приблизительно вследствие их разброса. Поэтому, как правило, интерпретация физических механизмов, которые отвечают за магнитные потери в различных частотных диапазонах, носит качественный характер.

Например, известно, что движение доменных границ отвечает за относительно низкочастотные потери, хотя граница частотного диапазона, в котором такие потери могут существовать, не установлена. Более высокочастотные потери обычно приписывают скин-эффекту или ФМР. Для выделения влияния скинирования на магнитную проницаемость в ряде публикаций использован «критерий скин-эффекта» [3], хотя, как легко убедиться, с его помощью нельзя доказать, что потери вызваны именно скинированием. Для определения доли магнитных моментов, которые участвуют в высокочастотной прецессии, используют закон Аше [1]. Для реальных материалов использование этого закона, как правило, затруднено из-за медленной сходимости соответствующего интеграла на высоких частотах.

Классическая теория ФМР рассматривает магнитные свойства отдельных частиц, и анализ магнитных свойств композитов необходимо проводить применительно к собственной магнитной проницаемости частиц, а не к эффективной проницаемости композитов. Для этого собственную магнитную проницаемость восстанавливают, используя известные формулы смещения [4]. Использование определенных формул смещения, например, теории эффективной среды, для расчета эффективной магнитной проницаемости композитов приводит к искажению формы пика магнитных потерь, что также усложняет анализ магнитной проницаемости.

Таким образом, проблема как количественного, так и качественного анализа высокочастотной дисперсии магнитной проницаемости малых магнитных частиц до сих пор не решена. В данной работе предлагается решать рассматриваемую проблему с помощью измерений магнитной проницаемости в зависимости не только от частоты, но и от внешнего магнитного поля. Известно, что зависимость магнитных потерь от внешнего постоянного магнитного поля различается в зависимости от физических механизмов, которыми вызваны наблюдаемые магнитные потери [5].

В качестве метода исследования СВЧ магнитных свойств материалов могут быть использованы измерения зависимости комплексной магнитной проницаемости μ от частоты f методом Николсона–Росса в коаксиальной линии. Разработанные методы калибровки коаксиальных линий позволяют проводить измерения с высокой точностью. Измерения характеризуются малым размером образцов, простотой обработки результатов и широким диапазоном частот: от 100 МГц до 20 ГГц.

Главным преимуществом подобных измерений для проводимого исследования является то, что измерительная ячейка может быть помещена в катушку, создающую однородное постоянное магнитное поле в направлении коаксиальной оси. Подобная методика измерений позволяет исследовать СВЧ магнитную проницаемость композитов в зависимости как от частоты, так и от внешнего поля. При этом частотный диапазон измерений достаточно широк, позволяя увидеть весь спектр целиком как при отсутствии поля, так и на различных стадиях намагничивания образца.

Однако неисследованными оставались проблемы восстановления собственной магнитной проницаемости включений во внешнем магнитном поле и учета влияния размагничивания на магнитную проницаемость композитных коаксиальных образцов, измеренную во внешнем поле.

Работа посвящена экспериментальному исследованию СВЧ магнитной проницаемости композитных материалов при приложении внешнего магнитного поля. Возможность менять внешнее магнитное поле может позволить

экспериментально определять физические механизмы, ответственные за возникновение различных пиков магнитных потерь, подробно изучать переход из размагниченного в намагниченное состояние и находить магнитные характеристики исследуемого материала. Такие данные могут иметь большое значение для понимания магнитной структуры и динамических магнитных свойств частиц включений.

Цель диссертационной работы:

Цель диссертационной работы состоит в экспериментальном исследовании магнитной структуры и динамических магнитных свойств композитов с помощью измерений СВЧ магнитной проницаемости в коаксиальной линии при приложении внешнего магнитного поля. Для достижения поставленной цели были решены следующие **задачи**:

1. Разработка комплексной методики измерений и анализа частотной дисперсии СВЧ магнитной проницаемости материалов в коаксиальной линии при приложении внешнего магнитного поля.

2. Верификация разработанной методики на тонких ферромагнитных пленках на гибкой подложке, интерпретация механизмов формирования измеряемых магнитных потерь, определение намагниченности насыщения и поля магнитной анизотропии исследуемых пленок.

3. Исследование влияния размагничивания на измеряемую во внешнем магнитном поле СВЧ магнитную проницаемость коаксиальных образцов из композитных материалов и тонких пленок.

4. Анализ возможности описания магнитной проницаемости композитных материалов с помощью формулы смешения Винера при наличии внешнего магнитного поля.

5. Анализ измеренной при приложении внешнего магнитного поля СВЧ магнитной проницаемости композитных материалов с целью интерпретации механизмов формирования наблюдаемых магнитных потерь.

Новизна исследований. Все основные положения, выносимые на защиту, и полученные результаты являются новыми. Впервые проведено комплексное исследование магнитной проницаемости композитных материалов при приложении внешнего магнитного поля, включающее анализ возможности восстановления собственной магнитной проницаемости включений при приложении внешнего поля, учет влияния размагничивания на магнитную проницаемость коаксиальных композитных образцов и интерпретацию механизмов формирования измеряемых СВЧ магнитных потерь.

Достоверность результатов диссертационной работы обеспечивается соответствием выводов теории полученным экспериментальным результатам.

Достоверность экспериментальных результатов обеспечена повторяемостью измеряемых величин и согласием результатов, полученных разными методами измерений. Найденные значения намагниченности насыщения совпадают со справочными данными. Оценены погрешности определения напряженности магнитного поля и объемной концентрации включений в образце.

Практическая значимость. Проведенные исследования важны для понимания магнитной структуры и динамических магнитных свойств малых магнитных частиц. На основе полученных данных могут быть созданы новые композитные материалы с уникальными радиофизическими свойствами, которые могут быть использованы для ряда практических применений.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Комплексная методика измерения и количественного анализа магнитной проницаемости в частотном диапазоне от 0,1 до 20 ГГц при приложении внешнего магнитного поля до 2400 Э позволяет определять физические механизмы, приводящие к появлению наблюдаемых магнитных потерь.

2. Методика количественного учета влияния постоянных размагничивающих полей на измеряемую во внешнем магнитном поле СВЧ магнитную проницаемость коаксиальных образцов из тонких пленок позволяет находить значения намагниченности насыщения и поля магнитной анизотропии.

3. Формула смешения Винера корректно описывает магнитную проницаемость исследованных композитных материалов с объемной концентрацией пластинчатых включений сендаста менее $(9,0 \pm 0,3)\%$ при отсутствии внешнего магнитного поля. Приложение внешнего магнитного поля приводит к изменению магнитной структуры частиц, увеличению взаимодействия между ними и неприменимости формулы смешения Винера.

4. Наблюдаемые СВЧ магнитные потери в пластинчатых частицах сендаста обусловлены доменными модами – уширением естественного ферромагнитного резонанса на доменной структуре в частицах. Найденные частоты доменных мод составляют 0,3 и 3 ГГц и соответствуют частотам измеряемых магнитных потерь.

5. В исследуемых изотропных композитных материалах с объемной концентрацией пластинчатых частиц сендаста менее $(7,0 \pm 0,3)\%$ размагничивающие поля, возникающие на отдельных частицах при приложении поля напряженностью более 1300 Э, приводят к искажению пика магнитных потерь.

Апробация результатов работы:

Работа выполнена в лаборатории электрофизики композиционных материалов ИТПЭ РАН. Основные положения и результаты, полученные в ходе

выполнения диссертационной работы, докладывались и обсуждались на следующих конференциях и симпозиумах: MISM 2017: 7th Moscow Int. Symp. on Magnetism, 01 – 05.07.2017, Moscow, Russia; IBCM 2017: International Baltic Conference on Magnetism, 20 – 24.08.2017, Svetlogorsk, Russia; JEMS 2018: Joint European Magnetic Symposia, 03 – 07.09.2018, Mainz, Germany; ФНМ 2018: VII Международная конференция "Функциональные наноматериалы и высокочистые вещества", 01 – 05.10.2018, Суздаль, Россия; InterMag 2021 VIRTUAL CONFERENCE, 26 – 30.04.2021; IBCM 2021: International Baltic Conference on Magnetism, 29.08.2021 – 02.09.2021, Svetlogorsk, Russia; а также на Ежегодных научных конференциях ИТПЭ РАН в 2016–2021 гг., на научных семинарах, проведенных в лаборатории электрофизики композиционных материалов ИТПЭ РАН.

Результаты диссертационной работы были использованы при выполнении проектов РФФИ №№ 19-32-90165, 18-08-00491, 20-52-53020 и РНФ №16-19-10490, в которых автор был одним из исполнителей.

Публикации. По материалам диссертационной работы опубликовано 8 работ, входящих в базы данных Scopus и Web of Science и 3 работы в журналах, входящих в перечень ВАК. Список публикаций, содержащих результаты диссертации, приведен в конце автореферата.

Личный вклад автора состоит в постановке задач, практической реализации экспериментальных методов для их решения, проведении всего объема экспериментальных работ, связанных с измерениями СВЧ магнитной проницаемости. Анализ и интерпретация экспериментальных результатов проводились совместно с научным руководителем.

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, пяти разделов, заключения и списка литературы. Общий объем диссертации составляет 148 страниц машинописного текста, включая 52 рисунка и 2 таблицы. Список литературы содержит 140 наименований.

Краткое содержание работы

Во введении обоснована актуальность темы исследований, сформулирована цель работы, определена новизна исследований, обсуждена практическая значимость полученных результатов, приведены основные положения, выносимые на защиту, изложено краткое содержание диссертации.

В первом разделе приведен обзор современного состояния исследований СВЧ магнитных свойств композитных материалов. В подразделе 1.1 описаны основные физические механизмы, приводящие к появлению магнитных потерь в СВЧ диапазоне: ФМР [6], скин-эффект [3], движение доменных границ [7] и доменные моды [2].

В подразделе представлен обзор классической теории ФМР. Рассмотрено решение уравнения Ландау-Лифшица [6] для однодоменной эллипсоидальной ФМ частицы и найден вид динамической магнитной проницаемости [6].

Показано, что частота ФМР $f_{\text{рез}}$ в случае тонких пленок или пластинчатых частиц связана с внешним магнитным полем $H_{\text{внеш}}$ формулой Киттеля [6]:

$$f_{\text{рез}} = \gamma \sqrt{(H_k + H_{\text{внеш}})(H_k + H_{\text{внеш}} + 4\pi M_0)}, \quad (1)$$

где H_k – эффективное поле анизотропии, γ – гиромагнитное отношение, $4\pi M_0$ – намагниченность насыщения.

Далее приведено решение уравнения Ландау–Лифшица при учете влияния диссипации энергии. Известно, что частотная зависимость магнитной проницаемости может быть описана дисперсионным законом Ландау–Лифшица–Гилберта (ЛЛГ) [8]:

$$\mu(f) = 1 + \frac{4\pi \gamma M_0 (f_x + i\alpha f)}{(f_x + i\alpha f)(f_y + i\alpha f) - f^2}, \quad (2)$$

где $f_x = \gamma(H_k + 4\pi M_0(N_x - N_z))$, $f_y = \gamma(H_k + 4\pi M_0(N_y - N_z))$, α – фактор затухания Гилберта, N_x, N_y, N_z – коэффициенты размагничивания частицы вдоль трех главных осей.

Часто для описания частотной зависимости магнитной проницаемости вместо закона ЛЛГ (2) используется лоренцев закон частотной дисперсии [1]:

$$\mu(f) = \mu_\infty + \frac{\mu_{\text{ст}} - 1}{1 + i f / f_{\text{рел}} - (f / f_{\text{рез}})^2}, \quad (3)$$

где μ_∞ – оптическая магнитная проницаемость, $f_{\text{рел}}$ – релаксационная частота.

При наличии нескольких отдельных пиков потерь или при размывании пика зависимость магнитной проницаемости от частоты часто описывают суммой двух или нескольких лоренцевых членов [1]:

$$\mu(f) = \mu_\infty + \sum_{j=1}^n \frac{4\pi \chi_{\text{ст},j}}{1 + i f / f_{\text{рел},j} - (f / f_{\text{рез},j})^2}, \quad (4)$$

где n – количество резонансов, j – индекс, соответствующий номеру резонанса, а $\chi_{\text{ст},j}$ – парциальные статические восприимчивости, соответствующие каждому из резонансов. Сумма оптической проницаемости и всех парциальных восприимчивостей равна $\mu_{\text{ст}}$.

В подразделе описан стандартный метод учета влияния скин-эффекта, заключающийся в перенормировке истинной магнитной проницаемости проводящей магнитной частицы в кажущуюся магнитную проницаемость [3]. Также рассмотрена возможность использования «критерия скин-эффекта» для определения того, связан ли наблюдаемый пик потерь со скинированием.

Рассмотрено влияние доменной структуры на СВЧ магнитную проницаемость. Показано, что ФМР расщепляется на доменной структуре, что приводит к появлению доменных мод [2], возбуждающихся на частотах:

$$f_{рез-} = \gamma H_k \quad (5)$$

$$f_{рез+} = \gamma [H_k(H_k + 4\pi M_0)]^{1/2}. \quad (6)$$

Из-за случайного распределения магнитных моментов магнитные потери композитных материалов наблюдаются в широкой полосе частот от $f_{рез-}$ до $f_{рез+}$.

Также в подразделе описан вклад колебаний доменных границ [7] в СВЧ магнитную проницаемость ФМ частиц.

Подраздел 1.2 посвящен обзору известных формул смещения [4]. Рассмотрены модель Максвелла Гарнетта, симметричная модель Брюггемана, формулы Оделевского, Сихволы и Винера, их преимущества, недостатки и особенности применения на практике.

В данной работе объектами исследования являются слоистые структуры на основе тонких пленок и композиты с пластинчатыми включениями. Такие материалы характеризуются малым форм-фактором и малым содержанием магнитного материала в композите, и для их магнитной восприимчивости справедлива формула смещения Винера:

$$\mu_{вкл} - 1 = (\mu_{эфф} - 1)/p, \quad (7)$$

где $\mu_{вкл}$ – собственная магнитная проницаемость пленки или включения, $\mu_{эфф}$ – измеренная эффективная проницаемость образца, p – объемная концентрация металла в образце.

Подраздел 1.3 посвящен обзору основных методов исследования магнитных свойств материалов: ФМР, магнитостатический метод и измерения СВЧ магнитной проницаемости. Рассмотрены основные источники погрешностей при измерении магнитной проницаемости и особенности *TRL* калибровки.

Рассмотрены известные из литературы результаты исследования СВЧ магнитной проницаемости композитов при приложении внешнего поля, см., напр., [9]. Важной проблемой при анализе данных измерений при приложении внешнего поля является задача учета влияния размагничивания [10]. Размагничивающие поля приводят к уменьшению внешнего магнитного поля внутри образца. Это поле зависит от форм-фактора образца N и его статической магнитной восприимчивости χ_{cm} в направлении внешнего постоянного поля. Поле внутри образца H_i может быть найдено с помощью уравнения:

$$H_i = H_{внеш} / (1 + 4\pi\chi_{cm}N). \quad (8)$$

Проблема размагничивания коаксиальной шайбы была решена в применении к задаче создания электромагнитной пушки [11]. Форм-фактор коаксиальной шайбы в направлении коаксиальной оси описывается уравнением [11]:

$$N_z(\theta, \tau) = \frac{1}{\tau(1-\theta^2)} \int_0^{+\infty} \frac{dq}{q^2} (1 - e^{-2q\tau}) [J_1(q) - \theta J_1(\theta q)]^2 \quad (9)$$

где θ – отношение внутреннего радиуса ко внешнему, τ – отношение высоты ко внешнему диаметру, J_1 – функция Бесселя 1-го порядка.

Учет размагничивания может позволить проводить количественный анализ измеренных данных и находить намагниченность насыщения и поле магнитной анизотропии материалов.

В подразделе 1.4 обоснована постановка решаемых задач.

Второй раздел посвящен особенностям изготовления исследуемых материалов и методам измерений. В подразделе 2.1 описаны детали изготовления тонких ФМ пленок и коаксиальных образцов из этих пленок. В качестве объектов исследования были выбраны пленки супермаллоя ($\text{Ni}_{0,79}\text{Fe}_{0,16}\text{Mo}_{0,05}$) и пленки железа на гибкой подложке. Образцы представляют собой длинные полосы, вырезанные из пленки и скрученные в рулон под размер коаксиальной ячейки, см. рисунок 1.

Полосы могут быть вырезаны в двух взаимно-перпендикулярных направлениях и скручены как металлом внутрь, так и наружу. Это дает возможность изготовления четырех типов образцов, благодаря чему могут быть исследованы анизотропия и магнитострикция пленок.

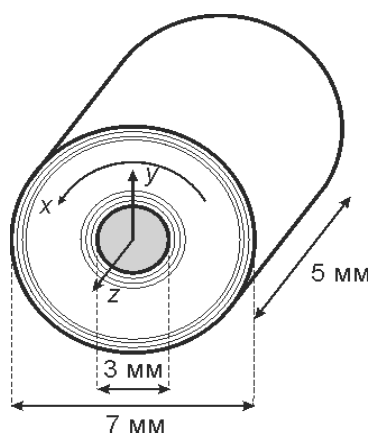


Рисунок 1 – Схематичное изображение образца из тонкой пленки для измерений СВЧ магнитной проницаемости

В подразделе 2.2 описаны особенности получения материала частиц и изготовления композитов. В качестве объекта исследования выбраны композитные материалы на основе парафиновой матрицы, наполненные пластинчатыми и сферическими частицами сендаста ($\text{Al}_{0,054}\text{Si}_{0,096}\text{Fe}_{0,85}$). Представлены изображения образцов, полученные с помощью сканирующего

электронного микроскопа, и результаты измерений гранулометрического распределения размеров порошков.

Описана методика изготовления коаксиальных образцов композитных материалов с анизотропным распределением частиц, которая заключается в помещении расплавленного образца в сильное однородное магнитное поле. С помощью предложенной методики изготовлены образцы с преимущественной ориентацией пластинчатых частиц вдоль и перпендикулярно коаксиальной оси.

В подразделе 2.3 приведено описание использованных в работе методов исследования магнитных свойств материалов: ФМР, магнитостатический метод и измерения СВЧ комплексной магнитной проницаемости.

Частотные зависимости СВЧ магнитной и диэлектрической проницаемостей измерены в частотном диапазоне от 0,1 до 20 ГГц методом прохождения–отражения (Николсона–Росса) в коаксиальной линии стандарта 7/3 при помощи векторного анализатора цепей Agilent E8363B. Для измерений магнитной проницаемости во внешнем магнитном поле коаксиальная ячейка была помещена в катушку, подключенную к источнику постоянного тока. Максимальное магнитное поле, создаваемое катушкой, составляет 2400 Э. Оценены значения погрешности определения напряженности магнитного поля, в котором расположен образец при измерении материальных параметров.

Петли гистерезиса исследуемых материалов были измерены при помощи вибрационного магнитометра в диапазоне магнитных полей до 14 кЭ.

Измерения методом ФМР проведены в Краснодарском высшем военном училище имени генерала армии С.М. Штеменко резонаторным способом на ЭПР спектрометре "JEOL JES FA-300" на частоте $f \approx 9,15$ ГГц.

Третий раздел посвящен исследованию СВЧ магнитных свойств тонких ФМ пленок на гибкой подложке. Целью раздела является верификация методики измерения и анализа СВЧ магнитной проницаемости при приложении внешнего магнитного поля на тонких ФМ пленках. Пленки выбраны в связи с более простой по сравнению с композитами интерпретацией физических механизмов и простотой измерений при приложении внешнего магнитного поля. В разделе найдены магнитные характеристики пленок, учтено влияние размагничивающих полей на магнитную проницаемость коаксиальных образцов и интерпретированы механизмы формирования измеряемых магнитных потерь.

В подразделе 3.1 приведены результаты измерений образцов из тонких ФМ пленок супермаллоя. Частотные зависимости магнитной проницаемости измерены для четырех типов образцов при приложении внешнего постоянного магнитного поля. Предложены два способа определения магнитных характеристик из измеренной во внешнем магнитном поле частотной зависимости магнитной проницаемости. Первый способ – это аппроксимация

зависимости частоты ФМР $f_{рез}$ от внешнего поля $H_{внеш}$ формулой Киттеля (1). Способ не требует знания толщины пленки для нахождения намагниченности насыщения и поля анизотропии.

Вторым способом является аппроксимация измеренной частотной зависимости магнитной проницаемости дисперсионным законом ЛЛГ (2). Этот способ позволяет помимо намагниченности насыщения и поля анизотропии найти фактор затухания Гилберта α и поле, в котором образец намагничивается до насыщения, однако требует знания толщины пленки.

Из измеренных зависимостей с помощью двух предложенных способов найдены намагниченность насыщения $4\pi M_0$, поле магнитокристаллической анизотропии H_k и поле магнитострикции H_y . Значения всех магнитных характеристик, найденных двумя способами, совпадают с высокой точностью. Намагниченность насыщения составила $4\pi M_0 = 0,71 \pm 0,02$ Тл, что близко к справочным значениям для супермаллоя и к значениям, полученным с помощью магнитостатических измерений и измерений методом ФМР. Однако найденные поля анизотропии образцов, вырезанных в двух взаимно перпендикулярных направлениях, различаются: их значения около 50 и 10 Э.

Подраздел 3.2 посвящен поиску причин несоответствия полей анизотропии образцов, вырезанных в двух взаимно перпендикулярных направлениях. Для нахождения причины различия полей анизотропии исследованы коаксиальные образцы с различной длиной намотки и различной толщиной образца. Показано, что уменьшение длины намотки, а, следовательно, и увеличение расстояния между слоями рулонного образца, приводит к сближению значений полей анизотропии, а уменьшение толщины образца приводит к их расхождению; при этом найденные значения намагниченности насыщения одинаковы для всех образцов. Расчет параметров дисперсионного закона ЛЛГ (2) при значениях форм-фактора, отличного от нуля, $N_z = 10^{-3}$, дает одинаковые значения полей анизотропии в двух направлениях, порядка 35 Э. Таким образом, показано, что на величины найденных полей анизотропии влияют переменные размагничивающие поля.

Подраздел 3.3 посвящен анализу измеряемых магнитных потерь. В магнитном поле магнитная проницаемость имеет лоренцев вид (3) и частота резонанса растет с увеличением внешнего поля по закону Киттеля (1). Таким образом, СВЧ магнитные потери исследованных пленок определяются ферромагнитным резонансом. Магнитная проницаемость в направлении ОЛН близка к единице, чем объясняется сильная магнитная анизотропия пленок.

В подразделе 3.4 исследовано влияние размагничивания на измеряемую магнитную проницаемость коаксиальных образцов из тонких пленок железа,

которые обладают более высоким полем насыщения по сравнению с пленками супермаллоя.

Измерена магнитная проницаемость и рассчитаны форм-факторы коаксиальных образцов двух разных толщин. На рисунке 2 показаны зависимости частоты ФМР, найденной из измеренной магнитной проницаемости, от внешнего магнитного поля. Видно, что зависимости различны для образцов разных толщин. Учет влияния размагничивания с помощью (8) и расчета форм-факторов коаксиальных образцов по формуле (9) приводит к тому, что эти зависимости ложатся на одну кривую, которая с высокой точностью может быть аппроксимирована формулой Киттеля (1).

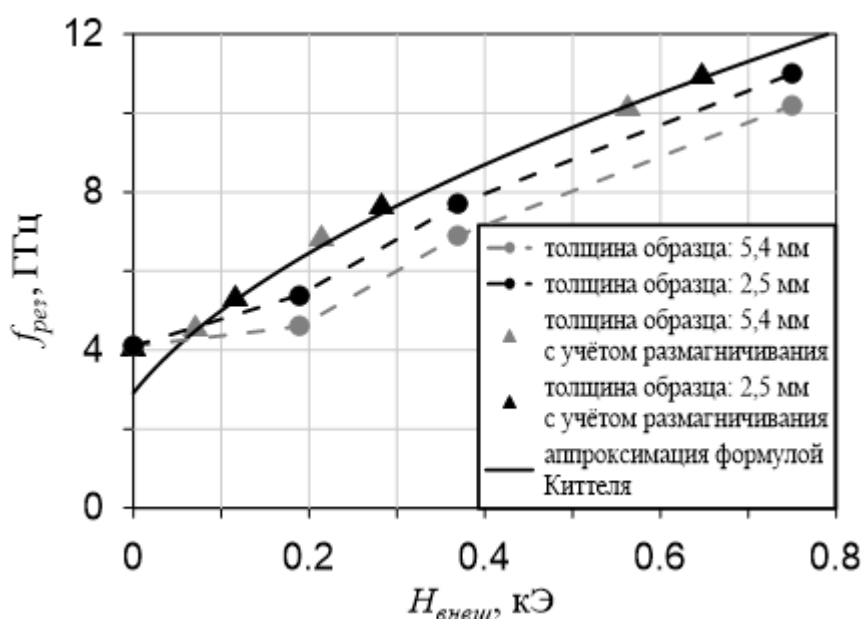


Рисунок 2 –
Зависимость частоты ФМР от внешнего поля без учета и с учетом влияния размагничивания по формулам (8) и (9)

Также показано, что размагничивание не влияет на результат измерения, если магнитная проницаемость пленки в направлении внешнего поля равна единице. Найденная с помощью учета размагничивания намагниченность насыщения пленки железа составляет 1,9 Тл. Таким образом, учет влияния размагничивания на магнитную проницаемость коаксиальных образцов позволил проводить количественный анализ измеряемых данных.

Четвертый раздел посвящен исследованию частотной зависимости магнитной проницаемости композитов, наполненных сферическими и пластинчатыми частицами сендаста, в нулевом внешнем магнитном поле и выбору формулы смешения, корректно восстанавливающей собственную магнитную проницаемость включений.

В подразделе 4.1 представлены измеренные зависимости статической диэлектрической проницаемости от концентрации включений $\epsilon_{ст}(p)$ и зависимости магнитной проницаемости от концентрации включений и частоты

$\mu(p, f)$. Зависимости $\varepsilon_{ст}(p)$ аппроксимированы формулой Оделевского [4], откуда найдены эффективный форм-фактор включений N и порог протекания p_c . Из найденного форм-фактора оценен диаметр пластинчатых включений, который хорошо согласуется с реальным размером частиц, определенным из микрофотографий.

Подраздел 4.2 посвящен восстановлению собственной магнитной проницаемости включений. Показано, что определение магнитной проницаемости включений с помощью формулы Оделевского может быть затруднено из-за высокой погрешности. Уменьшить ошибку определения собственной проницаемости возможно с использованием широкого диапазона концентраций включений исследуемых композитных материалов. Для восстановления собственной магнитной проницаемости пластинчатых включений использована формула смешения Винера (7), которая является частным случаем формулы Оделевского при малом форм-факторе включений. Магнитная проницаемость описывается формулой смешения Винера с высокой точностью.

Пятый раздел посвящен исследованию частотной зависимости магнитной проницаемости композитов при приложении внешнего магнитного поля с целью выяснения механизмов, приводящих к появлению пиков магнитных потерь, которые образуют СВЧ спектр магнитной проницаемости. Для этого собственная магнитная проницаемость частиц должна быть восстановлена при наличии внешнего магнитного поля. Для исследования выбраны композиты с пластинчатыми включениями сендаста, исследованные в предыдущем разделе, магнитная проницаемость которых подчиняется формуле смешения Винера (7).

В подразделе 5.1 представлены зависимости измеренных материальных параметров исследуемых композитов от частоты, внешнего магнитного поля и концентрации включений p в материале.

Измеренные зависимости собственных магнитных потерь, найденных по формуле Винера, от внешнего магнитного поля показаны на рисунке 3. Измерения проведены на фиксированных частотах. В отсутствие внешнего поля магнитные потери одинаковы для всех концентраций, что говорит о корректности формулы смешения Винера. При увеличении внешнего магнитного поля кривые расходятся. Причем кривые различаются по величине магнитных потерь, и учетом размагничивания по формуле (8) кривые нельзя привести к одному виду.

Таким образом, экспериментально показано, что формула смешения Винера, корректно описывающая магнитную проницаемость композита в отсутствие внешнего магнитного поля, при приложении поля оказывается неприменимой.

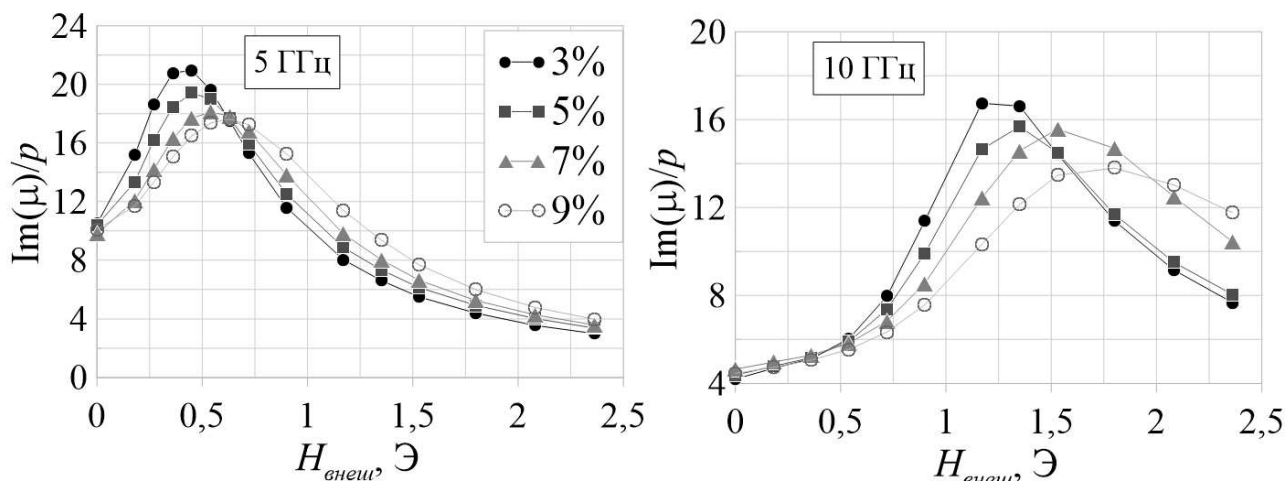


Рисунок 3 – Зависимость магнитных потерь от внешнего магнитного поля. Частоты измерений фиксированы и указаны на графиках

Подраздел 5.2 посвящен анализу измеренных данных, интерпретации механизмов формирования измеряемых магнитных потерь и поиску причин неприменимости формулы смещения при приложении магнитного поля. Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости при внешнем магнитном поле от 0 до 2400 Э показаны на рисунке 4. Видно, что зависимости имеют более сложный вид по сравнению с данными, полученными на пленках: если у пленок магнитная проницаемость в поле имела лоренцев вид, то у композитов с ростом внешнего поля меняется форма частотной зависимости. Наблюдается два эффекта: первый – при полях около 400 Э – увеличивается вклад высокочастотных магнитных потерь. А второй эффект – при полях более 1200 Э пик магнитных потерь искажается.

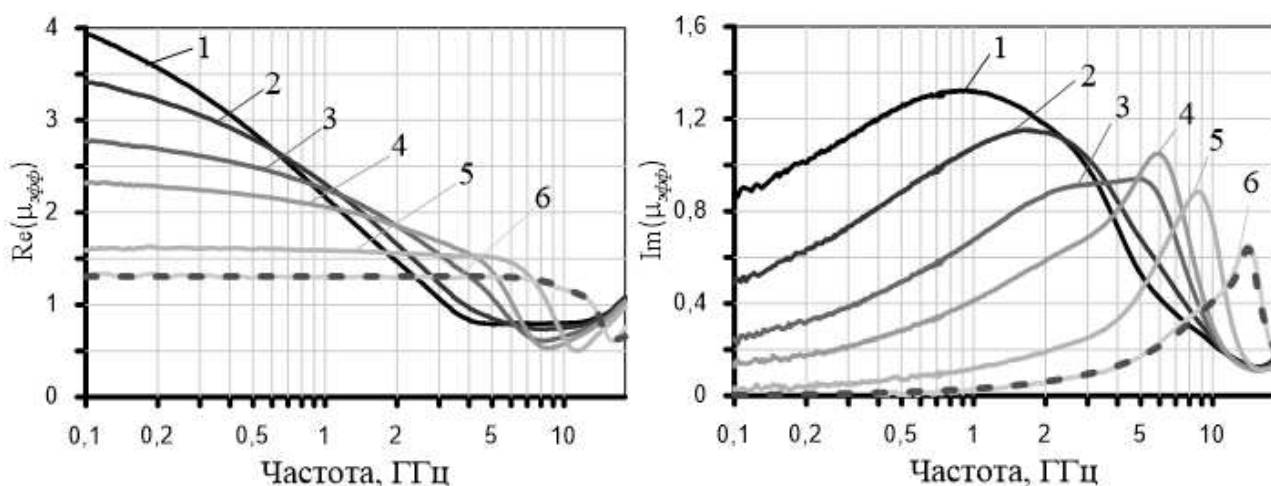


Рисунок 4 – Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости при концентрации включений 5 об% при значениях внешнего магнитного поля от 0 до 2400 Э: 1 – 0 Э, 2 – 180 Э, 3 – 360 Э, 4 – 540 Э, 5 – 1175 Э, 6 – 2400 Э.

Штриховой кривой показана аппроксимация двумя линиями Лоренца

Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости аппроксимированы двумя линиями Лоренца (4). Обнаружены два пика магнитных потерь с различным поведением во внешнем магнитном поле, причем второй пик отсутствует при нулевом внешнем поле.

Показано, что подобное поведение магнитных потерь связано с доменными модами – уширением ФМР на доменной структуре в частицах. При наличии доменной структуры полный магнитный момент частицы близок к нулю, близко расположенные частицы не взаимодействуют друг с другом, и резонансные частоты одинаковы при разных концентрациях включений. Для таких пиков верна формула смещения Винера (7). При приложении внешнего магнитного поля доменная структура исчезает, что увеличивает вклад ФМР на однодоменных частицах, ответственного за высокочастотный пик, в общие магнитные потери. При этом усиливается взаимодействие между частицами, и магнитная проницаемость должна описываться другими формулами смещения, которые учитывают магнитодипольное взаимодействие между включениями. С помощью (5) и (6) рассчитаны частоты доменных мод и показано, что они соответствуют частотам основного пика магнитных потерь.

Таким образом, показано, что измеренные СВЧ магнитные потери в пластинчатых частицах сендаста обусловлены доменными модами.

В подразделе 5.3 исследован эффект искажения пика магнитных потерь при приложении магнитного поля. Эффект обнаружен только у изотропных образцов с малой концентрацией включений и на более высоких полях, чем эффект, связанный с доменными модами. В подразделе показано, что это искажение ФМР в высоких магнитных полях связано с влиянием размагничивания. Для исследования данного эффекта проведены измерения образцов с различной толщиной, различной концентрацией включений, а также образцов с изотропной и анизотропной ориентацией частиц.

Показано, что при объемной концентрации включений менее $(7,0 \pm 0,3)\%$ внешнее магнитное поле размагничивается не на образце, а на отдельных частицах. В изотропном образце влияние размагничивающих полей различно в зависимости от ориентации того или иного включения, что приводит к наблюдаемому искажению магнитных потерь.

В анизотропных образцах частицы ориентированы одинаково, магнитная проницаемость не искажается и имеет лоренцев вид. При этом эффект, связанный с доменными модами, все еще наблюдается.

При объемной концентрации включений более $(12,0 \pm 0,5)\%$ постоянное магнитное поле размагничивается на образце как на едином целом, и магнитная проницаемость также имеет лоренцев вид, однако магнитная проницаемость образца при наличии внешнего поля зависит от его толщины.

Намагниченность насыщения материала определена с помощью измерений анизотропного образца, у которого плоскости частиц расположены вдоль внешнего поля. Найденное значение намагниченности насыщения составляет 1,0 Тл и совпадает со справочными данными и результатами магнитостатических измерений. Таким образом, показано, что наблюдаемое искажение пика магнитных потерь связано с размагничивающими полями, возникающими на частицах.

В заключении сформулированы основные результаты и выводы, полученные в ходе выполнения диссертационной работы.

Основные результаты диссертации

1. Разработана комплексная методика измерений и анализа частотной зависимости СВЧ магнитной проницаемости в коаксиальной линии при приложении внешнего магнитного поля.

2. Учен вклад размагничивания на коаксиальном образце, что позволило перейти к количественному анализу получаемых данных и найти магнитные характеристики тонких ферромагнитных пленок. Найденные значения поля анизотропии и намагниченности насыщения исследованных тонких пленок железа составляют 57 Э и 1500 Гс, соответственно.

3. Разработанная методика позволила определить намагниченность насыщения, поле анизотропии и поле магнитоупругости пленок супермаллоя. Показано, что два способа определения магнитных характеристик, а именно с помощью формулы Киттеля и с помощью дисперсионного закона Ландау–Лифшица–Гилберта, дают одинаковые результаты, совпадающие со справочными данными и результатами других измерений.

4. Показано, что восстановление собственной магнитной проницаемости с помощью формул Оделевского или Максвелла Гарнетта затруднено из-за высокой погрешности. Уменьшить ошибку определения собственной проницаемости возможно с использованием широкого диапазона концентраций включений исследуемых композитных материалов.

5. Экспериментально показано, что формула смещения Винера, корректно описывающая магнитную проницаемость исследуемых композитных материалов при отсутствии внешнего поля, при наличии внешнего поля оказывается неприменима из-за изменения магнитной структуры включений.

6. Предложена методика изготовления композитных материалов с анизотропным распределением пластинчатых включений, которая заключается в помещении расплавленного образца в сильное однородное магнитное поле.

7. Экспериментально показано, что измеренные СВЧ магнитные потери в пластинчатых частицах сендаста обусловлены доменными модами – уширением естественного ферромагнитного резонанса на доменной структуре в частицах.

8. Показано, что в исследуемых изотропных композитных материалах с объемной концентрацией пластинчатых частиц сендаста менее $(7,0 \pm 0,3)\%$ размагничивающие поля, возникающие на отдельных частицах при приложении поля напряженностью более 1300 Э, приводят к искажению пика магнитных потерь.

Список основных публикаций по теме работы

- 1 Starostenko S.N., Rozanov K.N., **Shiryaev A.O.**, Shalygin A.N., Lagarkov A.N. Determination of sendust intrinsic permeability from microwave constitutive parameters of composites with sendust spheres and flakes // J. App. Phys. 2017. V. 121 N.24. P. 245107.
- 2 Старостенко С.Н., Розанов К.Н., **Ширяев А.О.**, Лагарьков А.Н., Шалыгин А.Н. Определение сверхвысокочастотной магнитной проницаемости альсифера из измеренной проницаемости композитных материалов // Физика твердого тела. 2017. Т. 59. № 11. С. 2183–2190.
- 3 **Shiryaev A.O.**, Rozanov K.N., Vyzulin S.A., Kevraletin A.L., Syr'ev N.E., Vyzulin E.S., Lahderanta E., Maklakov S.A., Granovsky A.B. Magnetic resonances and microwave permeability in thin Fe films on flexible polymer substrates // J. Magn. Magn. Mater. 2018. V. 461. P. 76–81.
- 4 Starostenko S.N., Rozanov K.N., **Shiryaev A.O.**, Lagarkov A.N. A technique to retrieve high-frequency permeability of metals from constitutive parameters of composites with metal inclusions of arbitrary shape, estimate of the microwave permeability of Nickel // Pier M. 2018. V. 76. P. 143–155.
- 5 Starostenko S.N., Rozanov K.N., **Shiryaev A.O.**, Lagarkov A.N., Shalygin A.N. Selection of a mixing model and determination of inclusion microwave permeability for a composite filled with metal powder // J. Magn. Magn. Mater. 2018. V. 459. P. 305–310.
- 6 Yazovskikh K.A., Lomayeva S.F., Shakov A.A., Konygin G.N., Nemtsova O.M., **Shiryaev A.O.**, Petrov D.A., Rozanov K.N. Structure and microwave properties of fe75si25 alloys produced by high-energy wet ball milling in organic media // Письма о материалах. 2018. Т. 8. № 4 (32). С. 419–423.
- 7 **Shiryaev A.O.**, Rozanov K.N., Starostenko S.N., Bobrovskii S.Y., Osipov A.V., Petrov D.A. The bias effect on the frequency dispersion of microwave permeability of composites filled with metal films or flakes // J. Magn. Magn. Mater. 2019. V. 470. P. 139–142.
- 8 **Shiryaev A.O.**, Bobrovskii S.Y., Granovsky A.B., Osipov A.V., Naboko A.S., Lahderanta E., Lagarkov A.N., Rozanov K.N., Zezyulina P.A. Coaxial

measurements of microwave permeability of thin supermalloy films under magnetic bias // *J. Magn. Magn. Mater.* 2019. V. 477. P. 329–333.

- 9 Старостенко С.Н., Розанов К.Н., Бобровский С.Ю., **Ширяев А.О.** Двухкомпонентная гетерогенная система с формированием порога протекания за счет инверсии матричной структуры // *Радиотехника и электроника.* 2020. Т. 65. № 12. С. 1190–1197.
- 10 **Shiryaev A.O.**, Rozanov K.N., Naboko A.S., Artemova A.V., Maklakov S.S., Bobrovskii S.Y., Petrov D.A. Splitting of the Magnetic Loss Peak of Composites under External Magnetic Field // *Physics.* 2021. V. 3. N. 3. P. 678–688.
- 11 **Shiryaev A.O.**, Rozanov K.N., Artemova A.V., Bobrovskii S.Y., Naboko A.S., Osipov A.V., Petrov D.A., Zezyulina P.A. Experimental Study Of Microwave Magnetic Properties Of Composites Under Magnetic Bias // *2021 IEEE Int. Magn. Conf. (Intermag).* 2021. P. 1-5. doi: 10.1109/INTERMAG42984.2021.9579504

Список цитированных источников

1. Lagarkov A.N., Rozanov K.N. High-frequency behavior of magnetic composites // *J. Magn. Magn. Mater.* 2009. V. 321. P. 2082.
2. Polder D., Smit J. Resonance Phenomena in Ferrites // *Rev. Mod. Phys.* 1953. V. 25. P. 89.
3. Wu M., Zhang Y.D., Hui S., et al. Microwave magnetic properties of Co₅₀/(SiO₂)₅₀ nanoparticles // *Appl. Phys. Lett.* 2002. V. 80. P. 4404.
4. Sihvola A.H. Electromagnetic mixing formulas and applications // *IEEE.* 1999. P. 284.
5. Ebels U., Wigen P.E., Ounadjela K. Probing domain wall structures in Co(0001) thin films using ferromagnetic resonance // *Europhys. Lett.* 1999. V. 46 (1). P. 94–100.
6. Kittel C. Theory of the Dispersion of Magnetic Permeability in Ferromagnetic Materials at Microwave Frequencies // *Phys. Rev.* 1946. V. 70. P. 281.
7. Tsutaoka T., Kinoshita H., Kasagi T., et al. Analysis of the permeability spectra of the Fe-Al-Si granular composite materials // *IEEE Int. Sym. on Electromagn. Compos.* 2014. P. 781–784.
8. Rozanov K.N., Koledintseva M.Y. Application of generalized Snoek's law over a finite frequency range: A case study // *J. Appl. Phys.* 2016. V. 119. P. 073901.
9. Starostenko S.N., Rozanov K.N. The study of structure-dependent properties of thin magnetic films at microwaves by field-domain resonance technique // *PIER C.* 2009. V. 8. P. 43-55.
10. Чечерников В.И. Магнитные измерения. Издательство Московского Университета, 1969. стр. 388.
11. Bidinosti C.P., Sakamoto Y., Asahi K. General solution of the hollow cylinder and concentric dc surface current // *IEEE Magn. Lett.* 2014. V. 5. P. 04800304.