

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт  
теоретической и прикладной электродинамики Российской академии наук  
(ИТПЭ РАН)

На правах рукописи

Ширяев Артем Олегович

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ СВЧ СВОЙСТВ КОМПОЗИТНЫХ  
МАТЕРИАЛОВ ВО ВНЕШНЕМ ПОСТОЯННОМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ

1.3.13 – Электрофизика, электрофизические установки

Диссертация на соискание учёной степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:  
доктор физико-математических наук,  
Розанов Константин Николаевич

Москва 2022

## СОДЕРЖАНИЕ

Список использованных сокращений .....	4
Список использованных обозначений .....	5
Введение .....	8
1 Анализ современного состояния исследований СВЧ свойств композитных материалов .....	19
1.1 Анализ СВЧ магнитной проницаемости композитных материалов.....	20
1.1.1 Теория ферромагнитного резонанса .....	21
1.1.2 Влияние диссипации энергии на СВЧ магнитную проницаемость ферромагнитных материалов .....	30
1.1.3 Влияние скин-эффекта на СВЧ магнитную проницаемость ферромагнитных материалов .....	33
1.1.4 Влияние доменной структуры на СВЧ магнитную проницаемость материалов .....	34
1.2 Формулы смешения .....	38
1.3 Измерения СВЧ магнитных свойств материалов .....	44
1.4 Постановка задачи .....	51
2 Получение материалов и методы измерений .....	54
2.1 Изготовление образцов тонких ферромагнитных плёнок .....	54
2.2 Изготовление образцов композитных материалов .....	56
2.3 Методы измерения магнитных характеристик образцов.....	63
2.4. Выводы к разделу 2.....	67
3 Исследование СВЧ свойств тонких ферромагнитных плёнок на гибкой подложке при приложении внешнего постоянного магнитного поля .....	69

3.1 Измерения магнитной проницаемости тонких плёнок при приложении внешнего магнитного поля.....	71
3.2 Исследование влияния переменных размагничивающих полей на результат измерений во внешнем постоянном магнитном поле .....	82
3.3 Анализ магнитной структуры тонких ферромагнитных плёнок при приложении внешнего магнитного поля .....	86
3.4 Учёт влияния постоянных размагничивающих полей на измерения .....	90
3.5 Выводы к разделу 3.....	94
4 Исследование СВЧ магнитной проницаемости композитных материалов .....	96
4.1 Измерение частотных зависимостей эффективных материальных параметров композитов .....	97
4.2 Восстановление собственной магнитной проницаемости включений.....	101
4.3 Выводы к разделу 4.....	105
5 Исследование СВЧ магнитной проницаемости композитных материалов во внешнем постоянном магнитном поле.....	107
5.1 Измерение частотных зависимостей эффективной магнитной проницаемости композитов при приложении внешнего поля.....	108
5.2 Анализ измеренных частотных зависимостей магнитной проницаемости ..	112
5.3 Влияние размагничивающих полей на результат измерений магнитной проницаемости во внешнем магнитном поле .....	119
5.4 Выводы к разделу 5.....	132
Заключение .....	134
Список использованных источников .....	135

## СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ СОКРАЩЕНИЙ

ВАЦ – векторный анализатор цепей;

КО – коэффициент отражения;

КП – коэффициент прохождения;

ЛЛГ – Ландау–Лифшица–Гилберта (дисперсионный закон);

МГ – Максвелла Гарнетта (формула смешения);

НРУ – Николсона–Росса–Уира (методика измерений);

ОЛН – ось легкого намагничивания;

СВЧ – сверхвысокие частоты;

СЭМ – сканирующий электронный микроскоп;

ТЭС – теория эффективной среды;

ФМ – ферромагнитный;

ФМР – ферромагнитный резонанс.

## СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ

$\mu = \text{Re}(\mu) - i \text{Im}(\mu)$  – магнитная проницаемость;

$f$  – частота;

$\mathbf{M}$  – вектор намагниченности;

$\mathbf{H}$  – вектор полного магнитного поля;

$t$  – время;

$M_0$  – намагниченность насыщения;

$\gamma$  – гиромагнитное отношение;

$H_{\text{внеш}}$  – внешнее магнитное поле;

$H_k$  – поле магнитной анизотропии;

$H_y$  – поле магнитоупругости;

$\mathbf{h} = \{h_x, h_y, h_z\}$  – внешнее переменное магнитное поле;

$\mathbf{m} = \{m_x, m_y, m_z\}$  – переменная намагниченность;

$N_x, N_y, N_z$  – форм-факторы частицы вдоль трёх главных осей;

$\theta$  – отношение внутреннего радиуса коаксиального образца ко внешнему;

$\tau$  – отношение толщины коаксиального образца ко внешнему диаметру;

$J_1$  – функция Бесселя;

$\omega = 2\pi f$  – циклическая частота;

$\{\mu_x, \mu_y, \mu_z\}$  – диагональные компоненты тензора магнитной проницаемости;

$f_x, f_y$  – коэффициенты дисперсионной зависимости;

$\gamma' = \gamma/2\pi$ ;

$\mu_{\text{ст}}$  – статическая магнитная проницаемость;

$f_{\text{рез}}$  – резонансная частота;

$K_C$  – константа Снука;

$\kappa$  – фактор усреднения;

$K_A$  – константа Аше;

$\alpha$  – параметр затухания Гилберта;

$\mu_{\infty}$  – оптическая проницаемость;

$f_{\text{рел}}$  – релаксационная частота;

$n$  – количество резонансов;

$\chi_{\text{ст},j}$  – парциальные статические восприимчивости;

$\delta$  – толщина скин-слоя;

$\sigma$  – проводимость частицы;

$f_{\delta}$  – частота скинирования;

$K_{\delta}$  – коэффициент формы в критерии скин-эффекта;

$f_{\text{рез}+}$  – частота высокочастотной моды Полдера–Смита;

$f_{\text{рез}-}$  – частота низкочастотной моды Полдера–Смита;

$\varepsilon = \text{Re}(\varepsilon) - i \text{Im}(\varepsilon)$  – диэлектрическая проницаемость;

$\chi_{\text{вкл}}$  – нормированная восприимчивость включений;

$\chi_{\text{ком}}$  – нормированная восприимчивость композита;

$\mu_{\text{ком}}$  – магнитная проницаемость композита;

$\mu_{\text{матр}}$  – магнитная проницаемость матрицы;

$\mu_{\text{вкл}}$  – магнитная проницаемость включений;

$\varepsilon_{\text{ком}}$  – диэлектрическая проницаемость композита;

$\varepsilon_{\text{матр}}$  – диэлектрическая проницаемость матрицы;

$\varepsilon_{\text{вкл}}$  – диэлектрическая проницаемость включений;

$p$  – объемная концентрация включений;

$p_c$  – порог протекания;

$N_{\text{эфф}}$  – эффективный форм-фактор частиц;

$A$  – параметр структуры в модели Сихволы;

$Z_{\text{вх}}$  – входной импеданс;

$T$  – коэффициент прохождения;

$Z$  – характеристический импеданс;

$\eta$  – безразмерная оптическая толщина;

$\lambda$  – длина волны;

$R$  – коэффициент отражения;

$W_1, W_2, W_3$  – коэффициенты формулы Мейсона;

$H_i$  – поле внутри образца;

$m_n$  – масса связующего;

$m_m$  – масса наполнителя;

$d_1$  – внутренний диаметр коаксиального образца;

$d_2$  – внешний диаметр коаксиального образца;

$d$  – толщина коаксиального образца;

$m_0$  – масса образца;

$\rho$  – плотность образца;

$S$  – площадь сечения коаксиального образца;

$\rho_m$  – плотность наполнителя;

$m_0$  – масса наполнителя в изготовленном образце;

$p_2$  – объёмная концентрация связующего в образце;

$p_3$  – объёмная концентрация воздушных пор в образце;

$S_{ij}$  – измеряемые  $S$ -параметры;

$S_{ij}'$  –  $S$ -параметры, нормированные на плоскость образца;

$b$  – расстояние от плоскости образца до плоскости калибровки;

$k_0$  – постоянная распространения в воздухе;

$L_{line}$  – длина линии;

$H_{эфф}$  – общее эффективное поле;

$H_a$  – эффективное поле анизотропии;

$H_r$  – резонансное поле;

$\Delta H$  – ширина линии поглощения;

$k_A$  – безразмерный параметр Аше;

$\Delta\mu_{ком}$  – ошибка измерений магнитной проницаемости композита;

$\Delta\mu_{вкл}$  – ошибка определения собственной магнитной проницаемости включений;

$f_{макс}$  – частота максимума магнитных потерь.

## ВВЕДЕНИЕ

Композитные материалы, содержащие ферромагнитные (ФМ) частицы, обладают сочетанием перспективных для применений магнитных, электрических, оптических 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. К наиболее значимым исследованиям в этой области, вышедшим за последние годы, можно отнести публикации [2–6].

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 ферромагнитного резонанса и появлению доменных мод [7–9].

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» [10–11], 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 [12]. Для реальных материалов использование этого закона, как правило, затруднено из-за медленной сходимости соответствующего интеграла на высоких частотах [13]. Частота ФМР может быть определена на основании поля магнитной анизотропии, найденного из магнитостатических измерений, но такое определение часто приводит к высокой погрешности [14]. Возможной причиной этого является разброс полей анизотропии в разных участках материала [15]. Дополнительно в композитах спектр может быть искажен из-за разброса частиц по форме. Разброс частиц по размерам может приводить к дополнительному искажению спектра при наличии скин-эффекта.

Классическая теория ФМР рассматривает магнитные свойства отдельных ФМ 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 смешения [16]. Использование определённых формул смешения, например, теории эффективной среды, для расчета эффективной магнитной проницаемости композита 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 [17].

В качестве метода исследования СВЧ магнитных свойств материалов могут быть использованы измерения зависимости комплексной магнитной проницаемости  $\mu$  от частоты  $f$  методом Николсона–Росса–Уира 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 [18]. 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 смещения 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 Института теоретической и прикладной электродинамики Российской академии наук (ИТПЭ РАН). Основные положения и результаты, полученные в ходе выполнения диссертационной работы, докладывались и обсуждались на следующих конференциях и симпозиумах:

- MISM 2017: 7<sup>th</sup> 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, проведённых 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 РФФИ №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. Основные результаты опубликованы в статьях:

- 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. 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 Fe<sub>75</sub>Si<sub>25</sub> 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

**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.

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

**В первом разделе** приведен обзор современного состояния исследований магнитных СВЧ свойств композитных материалов, оценено влияние ФМР, скин-эффекта, доменной структуры на СВЧ магнитную проницаемость композитов. Рассмотрены основные формулы смешения, позволяющие восстановить собственную магнитную проницаемость включений. Изучено состояние экспериментальных исследований магнитных свойств композитных материалов при приложении внешнего магнитного поля и обоснована постановка решаемых задач.

**Второй раздел** посвящен особенностям изготовления исследуемых материалов и методам измерений. Рассмотрены технологии изготовления исследуемых тонких плёнок и композитов, наполненных ФМ включениями. Описана разработка методики измерений СВЧ магнитной проницаемости при

приложении внешнего магнитного поля. Рассмотрены другие методы измерений СВЧ магнитных свойств материалов, используемые в работе.

**Третий раздел** посвящен исследованию СВЧ магнитных свойств тонких ФМ плёнок на гибкой подложке для верификации разработанного метода измерений. Найдены намагниченность насыщения, поле анизотропии и поле магнитоупругости исследуемых плёнок. Показано, что два способа экспериментального определения магнитных характеристик, а именно с помощью формулы Киттеля и с помощью дисперсионного закона Ландау–Лифшица–Гилберта, дают одинаковые результаты. Исследовано влияние толщины коаксиального образца и размагничивающих полей на измерения. Определены физические механизмы, приводящие к появлению наблюдаемых пиков магнитных потерь.

**Четвёртый раздел** посвящен исследованию частотной зависимости диэлектрической и магнитной проницаемостей композитов, наполненных порошками сендаста, в нулевом внешнем магнитном поле и выбору формулы смещения, корректно восстанавливающей собственную магнитную проницаемость включений. Исследована возможность одновременного описания диэлектрической и магнитной проницаемости формулой смещения Оделевского, оценена ошибка определения собственной магнитной проницаемости. Показано, что эффективная магнитная проницаемость композитов, наполненных пластинчатыми частицами сендаста, подчиняется формуле смещения Винера.

**Пятый раздел** посвящён исследованию частотной зависимости магнитной проницаемости композитов, наполненных пластинчатыми включениями сендаста, при приложении внешнего магнитного поля. Показано, что формула смещения Винера, корректно восстанавливающая собственную магнитную проницаемость включений при отсутствии внешнего магнитного поля, при приложении поля становится неприменима. С помощью анализа измеренных данных определены механизмы, ответственные за возникновение наблюдаемых пиков потерь, и найдены причины некорректности формулы смещения при приложении поля.

Показано, что основной пик магнитных потерь композитов, наполненных плоскими частицами сендаста, связан с расщеплением ФМР на доменной структуре в частицах. Исследованы особенности намагничивания композитных материалов. Показано, что при малой доли включений внешнее магнитное поле размагничивается на отдельных включениях, за счёт чего пик магнитных потерь расщепляется при увеличении внешнего поля.

# 1 АНАЛИЗ СОВРЕМЕННОГО СОСТОЯНИЯ ИССЛЕДОВАНИЙ СВЧ СВОЙСТВ КОМПОЗИТНЫХ МАТЕРИАЛОВ

Композитные материалы, содержащие ФМ частицы в твердой матрице, обладают сочетанием перспективных для применений магнитных, электрических, оптических и механических свойств. Композиты имеют ряд преимуществ по сравнению с однородными металлами. Они обладают низкой электропроводностью, малым весом и высокой химической стабильностью. Обработка включений и варьирование концентрации наполнителя позволяют в широких пределах менять электродинамические свойства композитных материалов.

Электродинамические свойства композитных материалов определяются, в основном, наполнителем, в то время как физико-механические свойства в большей степени зависят от связующего. Это дает возможность создавать материалы, которые обладают и высокой эффективностью, и необходимыми физико-механическими свойствами. В связи с чем композитные материалы, наполненные ФМ включениями, широко используют в СВЧ диапазоне. СВЧ свойства композитов исследованы во многих публикациях, см. напр. [16, 19].

Повышенный в последнее время интерес к исследованию электродинамических свойств композитных материалов с ФМ включениями связан с широкими возможностями для их применения, развитием измерительной техники и технологии обработки материалов. Исследования структуры и свойств частиц порошков крайне важны для расширения возможностей использования композитных материалов.

Композитные материалы, содержащие ФМ частицы, применяются при создании антенн, радиопоглощающих покрытий и решении проблем электромагнитной совместимости. Важной проблемой является количественный анализ частотной зависимости СВЧ магнитной проницаемости, которая сложным

образом связана как с микроструктурой композита, так и со свойствами составляющих его материалов. Ряд публикаций посвящен исследованиям структуры и свойств частиц ФМ порошков [4, 20–26]. При этом надежных методов для определения физических механизмов, приводящих к появлению того или иного пика магнитных потерь, до сих пор не разработано.

### **1.1 Анализ СВЧ магнитной проницаемости композитных материалов**

К основным эффектам, определяющим вид СВЧ магнитной проницаемости, относят естественный ферромагнитный резонанс [27, 28], скин-эффект [10, 29] и движение доменных границ [30–32], за счет которых формируются пики высокочастотных магнитных потерь. Магнитная или структурная неоднородность материала может приводить к сдвигу, расщеплению, уширению или изменению соотношения амплитуд этих пиков. Некоторые пики могут быть связаны с расщеплением ФМР на спиновых волнах (моды Аарони [33–35]) и на доменной структуре (моды Полдера–Смита [7–9]). Как правило, разделение вкладов различной природы и интерпретация физических механизмов носит качественный характер.

Для определения доли магнитных моментов, которые вносят вклад в ФМР, используют закон Аше [12]. Для реальных материалов использование этого закона, как правило, затруднено из-за медленной сходимости соответствующего интеграла на высоких частотах [13]. Частота ФМР может быть найдена из поля магнитной анизотропии, найденного магнитостатическими методами, однако такое определение часто приводит к высокой погрешности [14]. Возможной причиной этого является разброс полей анизотропии в разных участках материала [15].

Известно, что доменные границы отвечают за относительно низкочастотные потери, хотя граница частотного диапазона, в котором проявляются эти потери, не установлена. Влияние доменной структуры на СВЧ магнитную проницаемость рассмотрена в пункте 1.1.4. Более высокочастотные потери, возникающие в

сантиметровом диапазоне длин волн, обычно приписывают скин-эффекту или ферромагнитному резонансу. Теория ФМР рассмотрена в пункте 1.1.1.

Для учета влияния скин-эффекта на проводящую магнитную частицу её истинную магнитную проницаемость пересчитывают в кажущуюся магнитную проницаемость [36]. Для определения того, связаны ли наблюдаемые магнитные потери со скин-эффектом, часто используют «критерий скин-эффекта» [11]. Однако низкочастотное асимптотическое поведение, на котором основано использование критерия, характерно для любого другого пика магнитных потерь. Подробно влияние скин-эффекта на магнитную проницаемость и критерий скин-эффекта рассмотрены в пункте 1.1.3.

В определенных случаях могут быть зафиксированы спиновые волны и моды Аарони, например, в спектре композитов, наполненных частицами карбонильного железа [34, 37]. Дополнительно в композитах спектр может быть искажен из-за разброса частиц по форме. Разброс частиц по размерам может приводить к дополнительному искажению спектра при наличии скин-эффекта.

### **1.1.1 Теория ферромагнитного резонанса**

Наибольший вклад в частотную зависимость магнитной проницаемости композитных материалов в СВЧ диапазоне вносит ферромагнитный резонанс. Явление ферромагнитного резонанса (ФМР) состоит в возбуждении переменным высокочастотным полем однородной прецессии магнитных моментов в постоянном магнитном поле. Реакция системы магнитных моментов на переменное электромагнитное поле описывается резонансной зависимостью магнитной проницаемости  $\mu$  от частоты  $f$ . ФМР можно наблюдать, измеряя либо объемное поглощение энергии СВЧ поля, либо коэффициент отражения волны от поверхности образца.

Рассмотрим поведение ФМ частицы эллипсоидальной формы, помещённой во внешнее магнитное поле. Пусть размеры частицы много меньше длины волны

действующего на неё переменного магнитного поля и размера магнитных доменов. В таком случае магнитное поле внутри частицы однородно, и магнитные моменты всех атомов параллельны. Движение магнитного момента описывается уравнением Ландау–Лифшица, которое можно использовать для анализа поведения частицы во внешнем переменном магнитном поле. Без учёта диссипации энергии уравнение имеет вид:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}, \quad (1.1)$$

где  $\mathbf{M}$  – вектор намагниченности частицы,  $\mathbf{H}$  – вектор полного магнитного поля, действующего на частицу,  $\gamma$  – гиромагнитное отношение (отношение дипольного магнитного момента элементарной частицы к механическому). Вектор намагниченности направлен вдоль постоянного магнитного поля, если на момент не действует переменное поле, и равен по модулю намагниченности насыщения материала  $M_0$ . Пусть постоянное магнитное поле и вектор намагниченности направлены вдоль оси  $z$ , которая совпадает с одной из главных осей эллипсоида.

На магнитный момент частицы действует полное магнитное поле  $\mathbf{H}$ , которое включает в себя несколько составляющих:  $H_{\text{внеш}}$  – внешнее постоянное магнитное поле,  $H_k$  – поле магнитокристаллической анизотропии,  $H_y$  – поле магнитоупругости,  $\mathbf{h} = \{h_x, h_y, h_z\}$  – внешнее переменное поле,  $\{-4\pi N_x m_x, -4\pi N_y m_y, -4\pi N_z (M_0 + m_z)\}$  – размагничивающие поля, где  $\mathbf{m} = \{m_x, m_y, m_z\}$  – переменная намагниченность, а  $N_x, N_y, N_z$  – форм-факторы частицы вдоль трёх главных осей.

В теории магнетизма сумму размагничивающих факторов обычно нормируют на  $4\pi$ . В данной работе нормировка форм-факторов выбрана такой, что  $N_x + N_y + N_z = 1$ . Такая нормировка одинаковым образом описывает электрический и магнитный отклик частицы. Для сферической частицы  $N_x = N_y = N_z = 1/3$ . Для бесконечно тонкой пластины форм-фактор вдоль оси, перпендикулярной плоскости пластины, близок к единице, а два других – к нулю. Для частицы игольчатой формы форм-фактор вдоль оси близок к нулю, а два других близки к 0,5. Для сплюснутых эллипсоидов

(дисков) с отношением толщины к диаметру  $d/D$  форм-фактор может быть получен из уравнения [38]:

$$N = \frac{1}{2} - \frac{1}{2-2(d/D)^2} \times \left[ 1 - \frac{d/D}{\sqrt{1-(d/D)^2}} \times \text{Arccos}(d/D) \right]. \quad (1.2)$$

Внутри частиц неэллипсоидальной формы магнитное поле неоднородно, что может исказить результаты измерений. Отклик таких частиц на внешнее поле описывают суммой множества форм-факторов [39] или вводят эффективный форм-фактор, зависящий не только от формы и ориентации частицы, но и от её восприимчивости [40–41]. На практике, отличие формы частицы от неэллипсоидальной приводит к дополнительному уширению пика магнитных потерь.

Если магнитное поле размагничивается на образце как на едином целом, для описания отклика магнитного поля используют форм-фактор образца. При измерениях СВЧ магнитной проницаемости, проводимых в диссертационной работе, образцы материалов имеют вид коаксиальных шайб. Проблема размагничивания коаксиальной шайбы была решена в применении к задаче создания электромагнитной пушки. Коэффициенты размагничивания таких образцов в направлении коаксиальной оси рассчитаны в [41, 42].

Форм-фактор для коаксиальной шайбы в направлении коаксиальной оси описывается уравнением [41]:

$$N_z(\theta, \tau) = \frac{1}{\tau(1-\theta^2)} \int_0^{+\infty} \frac{dq}{q^2} (1 - e^{-2q\tau}) [J_1(q) - \theta J_1(\theta q)]^2 \quad (1.3)$$

где  $\theta$  – отношение внутреннего радиуса ко внешнему,  $\tau$  – отношение толщины ко внешнему диаметру,  $J_1$  – функция Бесселя.

Уравнение Ландау–Лифшица (1.1) решают в предположении малости эффектов, связанных с переменным магнитным полем. Магнитный момент и магнитное поле представляют в виде суммы двух частей, зависящей и не зависящей от времени:

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_k + \mathbf{h}e^{i\omega t} \quad (1.4)$$

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}_0 + \mathbf{m}e^{i\omega t}$$

где  $\omega = 2\pi f$  – циклическая частота. При подстановке (1.4) в уравнение Ландау–Лифшица (1.1), уравнение примет вид:

$$\frac{d(\mathbf{M}_0 + \mathbf{m}e^{i\omega t})}{dt} = -\gamma(\mathbf{H}_k \times \mathbf{M}_0 + \mathbf{h}\mathbf{M}_0e^{i\omega t} + \mathbf{m}\mathbf{H}_ke^{i\omega t} + \mathbf{h}\mathbf{m}e^{2i\omega t})$$

Пренебрегая членами второго порядка малости и проецируя векторы переменного поля и намагниченности на главные оси, получим систему уравнений:

$$\begin{cases} i\omega m_x = -\gamma m_y H_k + \gamma M_0 h_y \\ i\omega m_y = -\gamma M_0 h_x + \gamma m_x H_k \\ i\omega m_z = 0 \end{cases} \quad (1.5)$$

Наличие размагничивания приводит к появлению дополнительных членов в уравнениях:

$$\begin{aligned} h_x &\rightarrow h_x - 4\pi N_x m_x \\ h_y &\rightarrow h_y - 4\pi N_y m_y \\ H_k &\rightarrow H_k - 4\pi N_z M_0 \end{aligned} \quad (1.6)$$

Магнитная проницаемость частицы является тензором. Недиagonальные компоненты отвечают за гиротропные эффекты и в данной работе не рассматриваются. Далее будут рассмотрены только диагональные компоненты магнитной проницаемости,  $\mu_x, \mu_y$  и  $\mu_z$ , где  $\mu_j = 1 + 4\pi m_j/h_j$  и  $j=x, y, z$ .

Если внешнее постоянное магнитное поле отсутствует, прецессия магнитного момента происходит в поле магнитной анизотропии материала  $H_k$ , что в литературе называют естественным ферромагнитным резонансом. Решение уравнения Ландау–Лифшица (1.1) приводит к следующим выражениям для магнитной проницаемости:

$$\mu_x = 1 + \frac{4\pi\gamma' M_0 f_y}{f_x f_y - f^2}, \quad \mu_y = 1 + \frac{4\pi\gamma' M_0 f_x}{f_x f_y - f^2}, \quad \mu_z = 1, \quad (1.7)$$

где  $f_x = \gamma'(H_k + 4\pi M_0(N_x - N_z))$ ,  $f_y = \gamma'(H_k + 4\pi M_0(N_y - N_z))$ ,  $\gamma' = \gamma/2\pi$ . Обычно у ферромагнетиков значение нормированного гиромагнитного отношения  $\gamma'$  порядка

3 ГГц/кЭ [43–45]. Для железа  $\gamma'=2,8$  ГГц/кЭ, для кобальта  $\gamma'=3,1$  ГГц/кЭ, для супермалля  $\gamma'=2,93$  ГГц/кЭ.

Из (1.7) видно, что внешнее переменное магнитное поле, направленное вдоль оси  $z$  (направление вектора намагниченности  $M_0$ ), не дает вклада в ФМР, и соответствующая компонента магнитной проницаемости равна единице. Две оставшиеся диагональные компоненты тензора магнитной проницаемости имеют резонансную зависимость от частоты:

$$\mu(f) = 1 + \frac{(\mu_{ст} - 1)}{1 - (f/f_{рез})^2}, \quad (1.8)$$

где  $\mu_{ст}$  – статическая магнитная проницаемость,  $f_{рез}$  – частота резонанса. При этом частота ФМР одинакова для неединичных диагональных компонент магнитной проницаемости и равна [46]:

$$f_{рез} = \gamma' \sqrt{(H_k + 4\pi M_0(N_x - N_z))(H_k + 4\pi M_0(N_y - N_z))} = \sqrt{f_x f_y}, \quad (1.9)$$

а статическая магнитная проницаемость  $\mu_{ст}$  различна:

$$(\mu_{ст})_x = 1 + \frac{4\pi \gamma' M_0}{f_x}, \quad (\mu_{ст})_y = 1 + \frac{4\pi \gamma' M_0}{f_y}. \quad (1.10)$$

Таким образом, магнитная проницаемость сильно зависит от формы частицы. Для сферической частицы ( $N_x=N_y=N_z=1/3$ ) при отсутствии внешнего постоянного магнитного поля:

$$f_{рез} = \gamma' H_k, \quad \mu_{ст} = 1 + 4\pi M_0/H_k. \quad (1.11)$$

Из уравнения (1.8) следует, что магнитная проницаемость растет с частотой до  $f_{рез}$ , а выше частоты ФМР падает ниже единицы. Наличие магнитных потерь в реальных материалах приводит к тому, что магнитная проницаемость уменьшается с ростом частоты, и выше частоты ФМР магнитная проницаемость становится близка к единице. Поэтому пригодность ФМ материала для СВЧ применений грубо оценивают исходя из значений частоты ФМР и статической магнитной проницаемости. Статическую проницаемость принимают в качестве оценки магнитной СВЧ

проницаемости ниже частоты ФМР, а частоту ФМР в качестве верхней границы рабочего диапазона.

Для получения высоких значений динамической магнитной проницаемости в широком диапазоне частот, должны быть велики и статическая магнитная проницаемость, и частота резонанса. При умножении (1.9) на одну из компонент статической магнитной проницаемости (1.10) можно получить

$$(\mu_{ст} - 1)f_{рез} = \gamma' 4\pi M_0 \sqrt{f_y / f_x}. \quad (1.12)$$

Здесь  $\mu_{ст}$  – это наибольшая диагональная компонента тензора магнитной проницаемости.

Одним из наиболее интересных случаев для рассмотрения является случай композитного материала с одинаковыми ФМ включениями сферической формы, у которых форм-факторы в направлении трёх главных осей одинаковы:  $N_x=N_y=N_z=1/3$ . В этом случае  $f_x=f_y$ ,  $\mu_x=\mu_y$  и  $\sqrt{f_x / f_y} = 1$ . При рассмотрении композитов необходимо вводить фактор усреднения  $\kappa$ , который учитывает случайное распределение направлений векторов намагниченности. В ФМ частицах при отсутствии внешнего магнитного поля, намагниченность в каждой частице направлена вдоль оси легкого намагничивания (ОЛН). ОЛН – это направление в ФМ частице, вдоль которого работа намагничивания частицы до насыщения, производимая внешним магнитным полем, минимальна. Для сферических частиц фактор усреднения равен  $\kappa=2/3$ , т.к. вклад в магнитную проницаемость вносят только динамические поля, направленные перпендикулярно вектору намагниченности. Из (1.12) можно получить закон Снука [47]:

$$(\mu_{ст} - 1)f_{рез} = \frac{2}{3} \gamma' 4\pi M_0. \quad (1.13)$$

Величину в правой части (1.13) называют константой Снука,  $K_C$ . Из (1.13) видно, что чем выше частота резонанса  $f_{рез}$  ферромагнетика, тем ниже статическая магнитная проницаемость  $\mu_{ст}$ , и наоборот.

Константа Снука зависит только от намагниченности насыщения материала  $4\pi M_0$ , т.е. определяется исключительно составом материала. Структурно-зависимые величины, такие как поле магнитной анизотропии  $H_k$  не входят в закон Снука (1.13). Таким образом, на константу Снука не влияют детали технологии изготовления и обработки материала. Существует множество методов [48, 49], позволяющих варьировать поле магнитной анизотропии материала, в связи с чем частота ФМР и статическая магнитная проницаемость могут сильно зависеть от технологии изготовления материала. Однако константа Снука структурно-независима и определяется только составом материала, с чем и связано её широкое использование при анализе СВЧ свойств магнитных материалов. ФМ материалы обладают высокой намагниченностью насыщения, за счёт чего имеют высокие значения константы Снука  $K_C$ . Например, железо имеет значение константы Снука порядка 40 ГГц.

Действительная и мнимая части магнитной проницаемости связаны соотношениями Крамерса–Кронига [38, 50]. Поэтому закону Снука подчиняется не только динамическая магнитная проницаемость, но и магнитные потери.

Закон Снука (1.13) применим только для сферических частиц ( $N_x=N_y=N_z=1/3$ ). Наибольший интерес представляют тонкие ФМ плёнки и плоские частицы, для которых  $N_x=N_z\approx 0$ ,  $N_y\approx 1$ . В этом случае статическая намагниченность и ОЛН лежат в плоскости материала в направлении оси  $z$ . Тогда формула Киттеля (1.6) примет вид:

$$f_{\text{рез}} = \gamma' \sqrt{H_k(H_k + 4\pi M_0)}. \quad (1.14)$$

При наличии нескольких полей, действующих на частицу, вместо  $H_k$  используют общее эффективное поле  $H_{\text{эфф}}$ . Обычно измерения ФМР проводят при приложении внешнего постоянного магнитного поля  $H_{\text{внеш}}$  перпендикулярно СВЧ магнитному полю. В этом случае (1.14) имеет вид:

$$f_{\text{рез}} = \gamma' \sqrt{|H_{\text{внеш}} \pm H_k| \times |H_{\text{внеш}} \pm H_k + 4\pi M_0|}. \quad (1.15)$$

Знак «плюс» выбирают, если поле анизотропии  $H_k$  параллельно внешнему магнитному полю  $H_{\text{внеш}}$ , знак «минус», если поля перпендикулярны [50].

Если  $H_k \ll 4\pi M_0$ , что справедливо для большинства материалов, и отсутствует внешнее магнитное поле, то (1.14) можно переписать в виде

$$f_{\text{рез}} = \gamma' \sqrt{H_k 4\pi M_0}. \quad (1.16)$$

При таких условиях у статической магнитной проницаемости останется лишь одна неединичная компонента магнитной проницаемости  $\mu_x$ , равная

$$\mu_{\text{ст}} = 1 + 4\pi M_0 / H_k. \quad (1.17)$$

Модифицируем (1.12) для случая тонких плёнок таким образом, чтобы его правая часть зависела только от состава материала, а не от особенностей его изготовления:

$$(\mu_{\text{ст}} - 1) f_{\text{рез}}^2 = (4\pi \gamma' M_0)^2. \quad (1.18)$$

Правая часть (1.18) зависит только от величины намагниченности насыщения  $M_0$  по аналогии с законом Снука (1.13). В случае композитного материала с плоскими включениями ОЛН случайно распределены по направлениям, и правую часть (1.18) также следует домножить на фактор усреднения  $\kappa$ . В данном случае лишь одна компонента тензора магнитной проницаемости не равна единице. Поэтому  $\kappa = 1/3$ , если магнитные моменты распределены изотропно в пространстве, и  $\kappa = 1/2$ , если магнитные моменты распределены изотропно в плоскости.

По аналогии с константой Снука, величину в правой части (1.18) называют константой Аше,  $K_A$ , а соотношение (1.18) законом Аше. Закон Аше так же, как и закон Снука, накладывает ограничение на максимальное значение динамической магнитной проницаемости в ферромагнетиках. Закон Аше (1.18) содержит квадрат намагниченности насыщения материала, из-за чего статическая магнитная проницаемость может достигать гораздо больших значений. При частоте ФМР равной 1 ГГц и намагниченности насыщения, равной 1700 Гс, то  $\mu_{\text{ст}}=40$  для закона Снука (1.13), и  $\mu_{\text{ст}}=3600$  для закона Аше (1.18). Выполнение закона Аше (1.18) экспериментально проверено для тонких ФМ плёнок и для композитных материалов с пластинчатыми включениями в работах [52–54].

Разница между максимально достижимыми значениями констант Снука и Аше в диапазоне 0,3–3 ГГц может составлять десятки раз. Таким образом, использование вместо сферических частиц ФМ плёнок или пластинчатых частиц позволяет достичь лучших магнитных свойств в СВЧ диапазоне. Это даёт широкие возможности для использования таких материалов для ряда технических применений.

Если учитывать влияние поля анизотропии и формы частицы (форм-факторы могут быть не равны нулю и единице), константу Аше необходимо переписать в виде [12]:

$$K_A = (\gamma' 4\pi M_0)^2 (1 - 3N_z/(4\pi) + 2H_k/(4\pi M_0)). \quad (1.19)$$

Дополнительным методом исследования СВЧ магнитных свойств тонких ФМ плёнок или пластинчатых частиц может быть расчёт параметра Аше  $k_A$ . Параметр Аше является безразмерной величиной и служит для оценки доли магнитных моментов в материале, которые дают вклад в пик магнитных потерь, связанный с ФМР. Обычно параметр Аше оценивают по формуле:

$$k_A = (\mu_{ст} - 1)f_{рез}^2/(4\pi M_0)^2 \quad (1.20)$$

считая при этом, что намагниченность насыщения много больше поля анизотропии.

Если плёнка однородно намагничена, ОЛН лежит в плоскости материала, а СВЧ магнитную проницаемость измеряют в плоскости материала перпендикулярно ОЛН, то параметр Аше стремится к единице. Меньшие значения  $k_A$  могут свидетельствовать о неперпендикулярности ОЛН и направления измерения магнитной проницаемости, выходе вектора намагниченности из плоскости материала, разбросу направлений поля магнитной анизотропии и т.п. Если пик магнитных потерь вызван движением доменных границ, то значение параметра  $k_A$  много меньше единицы.

## 1.1.2 Влияние диссипации энергии на СВЧ магнитную проницаемость ферромагнитных материалов

Уравнение Ландау–Лифшица в виде (1.1) не учитывает диссипацию энергии. Потери энергии при прецессии магнитного момента в магнитном поле можно учесть путём добавления дополнительного диссипативного члена в правую часть уравнения (1.1). Для учёта диссипации энергии используют диссипативные члены в форме Ландау–Лифшица, Гилберта, Блоха–Блумбергена и др. [55]. При рассмотрении ФМ материалов обычно используют диссипативный член Гилберта [56]:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\mathbf{M} \times \gamma \mathbf{H} + \frac{\alpha}{M_0} \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt}, \quad (1.21)$$

где  $\alpha$  – параметр затухания Гилберта. Вектор, соответствующий диссипативному члену Гилберта, направлен перпендикулярно вектору намагниченности насыщения. Следовательно, величина магнитного момента в уравнении (1.21) сохраняется. По этой причине диссипативный член Гилберта является наиболее часто употребляемым для ФМ материалов.

Если параметр затухания  $\alpha$  мал, уравнение (1.21) можно решить с помощью замены:

$$\gamma' H_k \rightarrow \gamma' H_k + i f \alpha. \quad (1.22)$$

Подставляя (1.22) в выражения для магнитной проницаемости (1.7), получим следующую частотную зависимость магнитной проницаемости:

$$\mu(f) = 1 + \frac{4\pi \gamma' M_0 (f_x + i\alpha f)}{(f_x + i\alpha f)(f_y + i\alpha f) - f^2}, \quad (1.23)$$

называемую дисперсионным законом Ландау–Лифшица–Гилберта (ЛЛГ).

Реальные частотные зависимости магнитной проницаемости ФМ материалов хорошо описываются дисперсионным законом ЛЛГ. Однако часто для описания частотной зависимости магнитной проницаемости вместо закона ЛЛГ (1.23) используется закон Лоренца:

$$\mu(f) = \mu_{\infty} + \frac{\mu_{ст} - 1}{1 + if/f_{рел} - (f/f_{рез})^2} \quad (1.24)$$

где  $\mu_{\infty}$  – оптическая проницаемость, а  $f_{рел}$  – релаксационная частота.

В числителе дисперсионного закона ЛЛГ присутствует дополнительный член, зависящий от частоты. При  $\alpha=0$  законы ЛЛГ (1.23) и Лоренца (1.24) совпадают. Расхождение между дисперсионными законами Лоренца и ЛЛГ мало при любых значения параметра затухания, если  $f_y/f_x \gg 1$  [57]. Следовательно, дисперсионный закон Лоренца (1.24) подходит для описания частотных зависимостей магнитной проницаемости тонких ФМ плёнок и композитов с пластинчатыми частицами. В этом случае параметры дисперсионного закона Лоренца могут быть получены из параметров закона ЛЛГ следующим образом:

$$\mu_{ст} - 1 = 4\pi\gamma' M_0 / f_x, \quad f_{рез}^2 = f_x f_y / (1 + \alpha^2), \quad 1/f_{рел} = \alpha(1/f_x + 1/f_y). \quad (1.25)$$

Возможность описания дисперсионных зависимостей реальных магнитных материалов законом Лоренца крайне важна для оптимизации их свойств. Дисперсионный закон Лоренца (1.24) содержит три параметра: амплитуду, положение и ширину пика потерь. Закон ЛЛГ (1.23) содержит четыре параметра, и четвёртый параметр определяет форму пика. Аппроксимация магнитной проницаемости законом ЛЛГ может приводить к неопределенности этого параметра. Поэтому при аппроксимации часто прибегают к дополнительным упрощениям, например, в случае сферических частиц  $f_x = f_y$  [32, 58–59].

Параметр затухания Гилберта  $\alpha$  сильно зависит от структуры материала [60–64]. Известно, что к уширению пиков магнитных потерь могут приводить неоднородность магнитных свойств в материале, разброс направлений поля анизотропии [65, 66], наличие магнитных доменов [31], скин-эффект, магнитострикционные эффекты, электродинамические (резонансные) эффекты и др. Все эти причины могут также привести к искажению формы дисперсионной зависимости магнитной проницаемости. При этом экспериментально собственное затухание и затухание, связанное с неоднородностью, неразличимы [67].

Неоднородность материала часто приводит к расщеплению пика магнитных потерь. СВЧ магнитная проницаемость магнитных материалов может содержать две отдельные области дисперсии. Такое поведение наблюдали у ферритов [68, 69] и у ФМ металлов [70, 71]. Обычно низкочастотный пик поглощения связывают либо с движением доменных границ, либо со скин-эффектом, а высокочастотные магнитные потери – с ФМР. Пики магнитных потерь, связанные с движением доменных границ, с высокой точностью описываются дисперсионными законами Лоренца [32] либо Дебая [72].

Может наблюдаться большее число пиков, например, вследствие обменных мод Аарони [33-35], связанных с расщеплением ФМР на спиновых волнах, а также вследствие расщепления ФМР в плёнках с полосовой доменной структурой [73, 74]. Теоретически предсказано расщепление магнитных потерь из-за разброса полей магнитной анизотропии по направлениям [75]. Однако случайное распределение направлений полей магнитной анизотропии скорее приведёт к дополнительному уширению пика магнитных потерь [57].

Если динамическая магнитная проницаемость содержит несколько отдельных пиков магнитных потерь, её описывают суммой нескольких лоренцевых линий [32, 76-79]:

$$\mu(f) = \mu_{\infty} + \sum_{j=1}^n \frac{4\pi\chi_{ст,j}}{1 + i f / f_{рел,j} - (f / f_{рез,j})^2} \quad (1.26)$$

где  $n$  – количество пиков,  $j$  – номер пика,  $\chi_{ст,j}$  – статическая восприимчивость. Сумма оптической проницаемости и всех восприимчивостей равна статической магнитной проницаемости.

Известно, что в ограниченном диапазоне частот любую кривую частотной зависимости магнитной проницаемости можно описать суммой достаточного количества линий Лоренца. Поэтому суммой лоренцевых линий (1.26) описывают частотные зависимости, содержащие как несколько пиков потерь, так и один

искаженный пик. Стоит отметить, что полученным таким образом парциальным резонансам не всегда можно приписать четкий физический смысл.

### 1.1.3 Влияние скин-эффекта на СВЧ магнитную проницаемость ферромагнитных материалов

Влияние скин-эффекта на магнитную проницаемость учитывают путём перенормировки истинной магнитной проницаемости частицы  $\mu_{\text{вн}}$  в кажущуюся  $\mu$  [36]:

$$\mu = \mu_{\text{вн}} F_{\delta}(X) \quad (1.27)$$

где  $X = a/2\delta(1 + i)$ ,  $a$  – характерный размер частицы,  $\delta = c/(2\pi\sqrt{\sigma\mu_{\text{вн}}f})$  – толщина скин-слоя,  $\sigma$  – проводимость частицы. Вид функции  $F_{\delta}$  определяется формой частицы. Для шара радиуса  $a$  [36]:

$$F_{\delta}(X) = \frac{2(\sin X - X\cos X)}{(X^2 - 1)\sin X + X\cos X}. \quad (1.28)$$

Для плёнки толщиной  $a$  [80]:

$$F_{\delta}(X) = \frac{tgX}{X}. \quad (1.29)$$

Функции  $F_{\delta}$  имеет комплексный аргумент  $X$ , поэтому кажущаяся магнитная проницаемость даже при действительной истинной магнитной проницаемости тоже является комплексной. При этом на частоте  $f_{\delta}$ , на которой глубина скин-слоя равна размеру частицы, возникает пик магнитных потерь, связанный со скин-эффектом. Если  $f_{\delta} \ll f_{\text{рез}}$ , то пик магнитных потерь формируется только скин-эффектом [81]. Если  $f_{\delta} \approx f_{\text{рез}}$ , то пик магнитных потерь имеет сложную форму, обусловленную взаимодействием ФМР и скин-эффекта [29].

Для выделения влияния скинирования на магнитную проницаемость в ряде публикаций используют «критерий скин-эффекта» [11]:

$$Im(\mu)/(Re(\mu)^2 f) = K_{\delta} a^2 \sigma, \quad (1.30)$$

где  $K_{\delta}$  – постоянная, определяемая формой частицы [82]. Этот критерий считают справедливым для всех материалов, собственная магнитная проницаемость

которых не зависит от частоты вплоть до достижения тех частот, на которых проявляется связанный со скин-эффектом пик магнитных потерь. Обратим внимание, что правая часть выражения (1.30) не зависит от собственной проницаемости частицы и ее частоты, а только от размера и проводимости. Критерий применяется при расчете по измеренным данным левой части (1.30) и используется на частотах, находящихся ниже пика потерь. Если в результате рассчитанная левая часть оказывается независимой от частоты, то наиболее низкочастотный пик магнитных потерь в измеряемой магнитной проницаемости вызван скин-эффектом [10, 83, 84].

В основе критерия лежит низкочастотное асимптотическое поведение магнитной проницаемости, обусловленной скин-эффектом, при котором  $\text{Re}(\mu) = \text{const}$  и  $\text{Im}(\mu) \propto f$ . Следует отметить, что для всех материалов действительная часть магнитной проницаемости является четной функцией частоты, а мнимая часть – нечетной [38]. Следовательно, такая асимптотика свойственна любому другому пику магнитных потерь. По этой причине использование критерия возможно только в тех случаях, когда магнитные потери, связанные с ФМР и движением доменных границ, расположены далеко в высокочастотной области по сравнению с пиком потерь скин-эффекта. Таким образом, независимость левой части равенства (1.30) от частоты не является доказательством того, что наблюдаемые магнитные потери обусловлены именно скин-эффектом.

#### **1.1.4 Влияние доменной структуры на СВЧ магнитную проницаемость материалов**

В данном подразделе будут рассмотрены основные физические процессы, определяющие магнитную проницаемость ФМ частиц при наличии доменной структуры. Доменная структура образуется в ФМ частицах таким образом, чтобы была минимальна суммарная свободная энергия ферромагнетика, куда входят магнитная и обменная энергии, энергия кристаллографической анизотропии и магнитоупругая энергия. Для большинства доменов направление намагниченности

должно совпадать с ОЛН, чтобы обеспечить достаточно малую величину энергии анизотропии. Магнитная энергия будет иметь малую величину, если магнитные потоки доменов будут замыкаться внутри тела.

Задача об определении формы и размеров доменов была решена впервые [85] для случая магнитно-одноосного кристалла. Если граница такого кристалла перпендикулярна оси легкого намагничивания, то домены представляют собой слои, параллельные оси, замыкаемые на границе кристалла треугольными призмами. Обычно замыкающие домены – призмы на границе кристалла из рассмотрения исключают. Также границы доменов считают бесконечно тонкими.

При приложении внешнего постоянного магнитного поля границы доменов смещаются, что приводит к росту доменов, в которых вектор намагниченности составляет острый угол с вектором внешнего поля, и повороту векторов намагниченности внутри доменов. Процессы смещения заканчиваются с исчезновением доменной структуры, а процессы вращения – лишь при полном насыщении материала.

Рассмотрим геометрию, характерную для полосовой доменной структуры, в которой ОЛН частицы перпендикулярна плоскости. Векторы магнитного момента в соседних доменах могут прецессировать либо в фазе, либо в противофазе [8]. В первом случае частота прецессии равна  $f_{\text{рез}+} = \gamma'[H_k(H_k + 4\pi M_0)]^{1/2}$ , что совпадает с частотой ФМР для тонких плёнок (1.14). Во втором случае магнитный момент прецессирует в поле магнитной анизотропии  $H_k$  с частотой  $f_{\text{рез}-} = \gamma'H_k$ , равной частоте ФМР сферической частицы (1.11). Таким образом, ФМР расщепляется на доменной структуре на две моды, известные как доменные моды или моды Полдера–Смита [7]. Внешнее переменное поле, параллельное доменным границам, возбуждает высокочастотную моду с частотой  $f_{\text{рез}+}$ , а поле, перпендикулярное границам, возбуждает низкочастотную моду  $f_{\text{рез}-}$ .

Исследования, представленные в [8, 9], предлагают более общую теорию ФМР в предположении узких доменов. Впоследствии был учтен случай конечной

ширины доменов путем обобщения уравнений для резонансных частот [86, 87]. Лишь в одной статье [88], приведен расчет магнитной проницаемости, тогда как подавляющее большинство изученных работ вели расчеты частот ФМР.

Если внешнее магнитное поле направлено под углом к доменным границам, то возбуждаются обе моды Полдера–Смита, и магнитная проницаемость состоит из двух отдельных пиков магнитных потерь. В композитных материалах частицы распределены изотропно, поэтому магнитные потери наблюдаются в широкой полосе частот от  $f_{рез-}$  до  $f_{рез+}$ .

Рассмотрим колебания доменных границ под действием переменного магнитного поля. Считается, что движение доменных границ инерционно и не вносит вклад в СВЧ магнитную проницаемость, однако в некоторых работах [30, 31, 89] магнитные потери на сотнях МГц приписывают резонансу доменных границ.

Смещение границы между доменами происходит в результате поворотов векторов намагниченности в граничной области. Поэтому высокочастотные процессы смещения доменных границ описывают с помощью уравнения Ландау-Лифшица, примененного к граничной области. При этом учитывают эффективное поле обменного взаимодействия и динамические размагничивающие поля.

Для нахождения частоты колебаний границы доменов решают уравнение движения границы, считая, что в результате поворотов векторов намагниченности граница смещается как одно целое с некоторой скоростью, пропорциональной переменному магнитному полю.

Стандартный метод описания движения доменных границ [90] основан на введении некой упругой силы, которая действует на границу. В реальном материале присутствуют неоднородности и внутренние механические напряжения, влияющие на равновесное положение, которое занимает граница. При таком положении энергия минимальна, и отклонение границы от положения равновесия приводит к появлению силы упругости, стремящейся вернуть границу обратно.

Выражения для частот резонанса и релаксации доменной границы, получаемые из уравнения движения, зависят от чисто эмпирических параметров, таких как эффективная масса движущейся границы, коэффициент упругости, средний размер доменов, коэффициент трения при перемещении границы. Используемые параметры очень трудно измерить. Качественные оценки и экспериментальные данные дают величину частот резонанса порядка 100 – 1000 МГц [32, 91, 92]. В ряде работ подтверждено, что область дисперсии магнитной проницаемости ферритов в диапазоне 10 – 1000 МГц связана с высокочастотными колебаниями доменных границ.

Измеренный в работе [93] магнитный спектр порошка с однодоменными частицами не проявлял частотной дисперсии в данном частотном диапазоне, а такой же материал в виде сплошного поликристаллического образца содержал четко выраженные две области магнитных потерь. При этом положение и характер области, связанной с естественным ферромагнитным резонансом, мало изменялись при переходе от порошка к сплошному образцу.

В работе [92] увеличение амплитуды магнитного поля мало влияло на область ФМР и резко деформировало область резонанса доменных границ, т.к. процессы смещения границ более чувствительны к увеличению амплитуды поля.

Изменение магнитной проницаемости, определяемое процессами смещения границ, может носить как резонансный, так и релаксационный характер. Различие резонансных частот для разных границ может приводить к размыванию спектра. Размывание может быть настолько сильным, что резонансный характер данной области спектра становится незаметным.

При наличии внешнего магнитного поля границы доменов сместятся в новые равновесные положения. Колебания границ около новых положений равновесия будут происходить так же, как и при нулевом внешнем поле, если поле не настолько велико, чтобы привести к исчезновению доменной структуры.

## 1.2 Формулы смешения

Прямое измерение собственной СВЧ магнитной проницаемости материала включений композита невозможно из-за наличия скин-эффекта, а измерения отдельных частиц затруднены из-за недостаточной чувствительности измерительных методик. Кроме того, в композитах спектр искажен из-за разброса частиц по форме и размерам. При исследовании СВЧ свойств композитов одной из важнейших проблем является описание зависимости эффективной проницаемости композита от проницаемости включений и матрицы.

Обычно данную проблему решают путём использования эмпирических формул смешения. В основном, рассматривают композитные материалы, состоящие из двух компонентов: идентичных включений эллипсоидальной формы и однородной матрицы. Эффективные свойства таких композитов зависят от собственных свойств включений и матрицы, а также от морфологии материала. Под морфологией подразумевается расположение включений в матрице, их концентрация, форма, наличие взаимодействия между частицами и корреляций в их положении, наличие агломераций и преимущественной ориентации [94].

Обычно считают, что и для диэлектрической, и для магнитной проницаемости композита во всем частотном диапазоне применима одна формула смешения [95]. Поэтому, обычно используют нормированные диэлектрическую и магнитную восприимчивость включений и композитов,  $\chi_{\text{вкл}} = (\epsilon_{\text{вкл}}/\epsilon_{\text{матр}} - 1)$  или  $\mu_{\text{вкл}}/\mu_{\text{матр}} - 1$  и  $\chi_{\text{ком}} = (\epsilon_{\text{ком}}/\epsilon_{\text{матр}} - 1)$  или  $\mu_{\text{ком}}/\mu_{\text{матр}} - 1$ , соответственно. Индексы «вкл», «матр» и «ком» относятся к включениям, связующему и композиту, соответственно. Форму включений описывают их форм-фактором  $N$ . Введенные таким образом величины одинаковым образом описывают и диэлектрическую, и магнитную проницаемости композитных материалов.

В основе формул смешения лежит квазистатическое рассмотрение включений, поэтому считают, что частотная дисперсия эффективной восприимчивости

композитов возникает за счет частотной дисперсии восприимчивости включений. Скин-эффект на включениях можно учесть с помощью перенормировки собственной магнитной проницаемости включений [36].

Среди существующих формул смешения, одними из наиболее известных являются модель Максвелла Гарнетта (МГ) [16, 96] и симметричная теория эффективной среды (ТЭС) Брюггемана [16, 97, 98].

Модель МГ основана на том, что поляризуемость эффективной среды характеризуется суммарной поляризуемостью включений:

$$\frac{\chi_{\text{ком}}}{1+N\chi_{\text{ком}}} - p \frac{\chi_{\text{вкл}}}{1+N\chi_{\text{вкл}}} = 0. \quad (1.31)$$

где  $p$  – объемная концентрация включений,  $N$  – форм-фактор включений. Эффективная среда считается однородной. Восприимчивость композита  $\chi_{\text{ком}}$  имеет вид:

$$\chi_{\text{ком}} = \frac{p}{N(1-p)+1/\chi_{\text{вкл}}}. \quad (1.32)$$

Формула МГ учитывает только наименьшее взаимодействие между включениями. Поэтому теория МГ справедлива для случая малых неоднородных полей, возникающих из-за рассеяния на включениях.

Часто собственная восприимчивость включений является комплексной величиной на некоторой частоте. В этом случае как действительная, так и мнимая части эффективной восприимчивости композита на этой частоте могут быть выше частей восприимчивости включений.

Симметричная теория эффективной среды Брюггемана рассматривает частицу, погруженную не в среду матрицы, как в случае теории МГ, а в некоторую однородную эффективную среду. Предполагается, что поляризуемость эффективной среды равна эффективной поляризуемости смеси. При этом матрицу композита формально разделяют на отдельные частицы такой же формы, что и частицы включений.

Поляризуемости частиц включений и матрицы композита должны компенсировать друг друга для получения однородной среды. Это приводит к уравнению:

$$(1 - p) \frac{\chi_{\text{ком}}}{1 + \chi_{\text{ком}}(1 - N)} = p \frac{\chi_{\text{вкл}} - \chi_{\text{ком}}}{1 + N\chi_{\text{вкл}} + \chi_{\text{ком}}(1 - N)}. \quad (1.33)$$

ТЭС имеет большое значение для описания диэлектрических свойств композитов с проводящими включениями, т.к. вводит понятие порога протекания,  $p_c$ , – концентрации включений, выше которой композит имеет ненулевую статическую проводимость. Значение порога протекания в ТЭС равно значению форм-фактора включений. Формула смешения МГ имеет порог протекания, равный единице.

Формула МГ (1.31) и формула Брюгемана (1.33) имеют ограниченную применимость и низкую точность, так как даже идеально сферические частицы часто агрегируются в кластеры с эффективной формой, отличающейся от сферической.

В случае малой концентрации включений в композите,  $p \ll p_c$ , взаимодействием между включениями можно пренебречь. Рассмотренные выше формулы смешения сводятся к приближению малых возмущений:

$$\chi_{\text{ком}} = p \frac{\chi_{\text{вкл}}}{1 + N\chi_{\text{вкл}}}, \quad (1.34)$$

которое является предельным случаем для рассмотренных формул смешения при  $p \rightarrow 0$ . Из (1.34) видно, что при малой концентрации  $p$  зависимость восприимчивости от  $p$  линейна. При высоких значениях  $\chi_{\text{вкл}}$  из этой зависимости может быть найден эффективный форм-фактор включений. При увеличении концентрации взаимодействие между частицами возрастает, и зависимость восприимчивости от концентрации перестает иметь линейный вид. При этом результаты формул смешения МГ и Брюгемана начинают отличаться друг от друга.

Частным случаем формулы МГ (1.32) при  $N\chi_{\text{вкл}} \ll 1$  является формула смешения Винера [99], обеспечивающая линейный рост восприимчивости композитного материала  $\chi_{\text{ком}}$  с увеличением концентрации наполнителя  $p$ :

$$\chi_{\text{ком}} = \chi_{\text{вкл}} p. \quad (1.35)$$

Формула является простейшей из рассмотренных, справедлива при малых значениях форм-фактора  $N$  или в случае малого отличия между проницаемостями наполнителя и матрицы. Формулу Винера используют для описания магнитной проницаемости композитов, наполненных пластинчатыми частицами [82, 100] и слоистых структур на основе тонких ФМ плёнок [101, 102]. Магнитные потери композитных материалов, описываемые формулой Винера, не сдвигаются по частоте при изменении концентрации включений.

Строго говоря, формулы МГ и Брюггемана справедливы только для включений сферической формы ( $N=1/3$ ). В этом случае они согласуются с формулой Ландау–Лифшица–Лоенги [38, 103], которая не зависит от форм-фактора и является строгим результатом при  $\chi_{\text{вкл}} \rightarrow 0$ . Это серьезный недостаток теорий, так как форм-фактор включений, найденный из экспериментальных данных, часто отличается от  $1/3$  даже в композитах, содержащих сферические частицы. Например, в композитах, содержащих сферические включения карбонильного железа, форм-фактор отличается от  $1/3$  из-за магнитной агломерации частиц [104]. Расхождение с формулой Ландау–Лифшица–Лоенги, определяющей высокочастотное поведение восприимчивости, приводит к искажению частотной зависимости магнитной проницаемости. На практике уравнения (1.32), (1.33) и (1.34) применяют и для несферических включений, при этом используют эффективный форм-фактор  $N_{\text{эфф}}$ , отличный от  $1/3$ .

В случае частиц несферической формы необходимо описывать влияние ориентации включений, для чего в правые части формул МГ и Брюггемана вводят фактор усреднения  $k$ , см. пункт 1.1.1. Анизотропию магнитного момента в случае магнитных включений необходимо учитывать дополнительно.

В основе формул смещения, представленных выше, лежат простые идеализированные модели, которые во многих случаях не согласуются с экспериментальными данными. Эффективная восприимчивость композитов зависит от множества факторов, которые необходимо учитывать при анализе: разброс включений по форме и размеру, наличие преимущественной ориентации

несферических включений, разброс собственных свойств включений, наличие изолирующего слоя на поверхности частиц и др. Без учета особенностей морфологии композитных материалов нельзя добиться точного согласия теоретических и экспериментальных данных эффективной восприимчивости. В случае исследования композитного материала, наполненного проводящими включениями, их диэлектрическую проницаемость считают бесконечной. Эффективная диэлектрическая проницаемость таких композитов не зависит от собственной проницаемости включений и полностью определяется их морфологией.

Часто свойства композитов описывают эмпирическими параметрами, которые находят из аппроксимации экспериментальных данных теоретическими зависимостями. Это связано с наличием большого числа факторов, которые трудно учесть теоретически. Формула смешения, предложенная Оделевским [105], основана на сходстве матричных и симметричных моделей и введении порога протекания  $p_c$  в качестве эмпирического параметра. Оделевский обнаружил аналогию между формулами смешения МГ и Брюггемана и получил уравнение, обобщающее эти две формулы смешения для случая смеси металл-диэлектрик:

$$\chi_{\text{ком}} = \frac{p}{N_{\text{эфф}}(1-p/p_c)}. \quad (1.36)$$

Формула (1.36) переходит в формулу Брюггемана (1.33) при  $p_c=N$  и в формулу МГ (1.32) при  $p_c=1$ .

Формулу смешения (1.36) можно экстраполировать на случай конечной восприимчивости  $\chi_{\text{вкл}}$  по аналогии с (1.32):

$$\chi_{\text{ком}} = \frac{p}{N_{\text{эфф}}(1-p/p_c)+1/\chi_{\text{вкл}}}. \quad (1.37)$$

В (1.37) форм-фактор частиц  $N_{\text{эфф}}$  и порог протекания  $p_c$  также могут быть использованы в качестве эмпирических параметров. Эффективный форм-фактор  $N_{\text{эфф}}$  характеризует форму включений, а порог протекания  $p_c$  – их взаимодействие. Первый параметр определяет наклон линейной части концентрационной зависимости восприимчивости, а второй – отклонение зависимости от линейной при высоких

концентрациях, где преобладают эффекты взаимодействия частиц.

Недостатками формулы Оделевского (1.36) являются ограниченный диапазон концентраций и расхождение вблизи порога протекания с формулой Ландау–Лифшица–Лоенги [38, 103]. Формулы смешения должны быть корректны в диапазоне  $0 < p < 1$ , в то время как модель Оделевского применима в диапазоне  $0 < p < p_c$ . Более корректна модель Сихволы [16, 106], включающая в себя четыре эмпирических параметра:

$$\frac{\chi_{\text{КОМ}}}{\chi_{\text{ВКЛ}}} = p \frac{\sum_{k=1}^3 \frac{1 + A\chi_{\text{КОМ}}}{1 + A\chi_{\text{КОМ}} + N_k\chi_{\text{ВКЛ}}}}{3 - p\chi_{\text{КОМ}} \sum_{k=1}^3 \frac{N_k}{1 + A\chi_{\text{КОМ}} + N_k\chi_{\text{ВКЛ}}}}. \quad (1.38)$$

где  $A$  – некий формальный параметр структуры ( $0 < A < \infty$ ),  $N_k$  – форм-факторы включения вдоль трёх главных осей. Модель Сихволы (1.38) описывает изотропный композит с несферическими частицами с тремя разными форм-факторами  $N_1 \neq N_2 \neq N_3$ .

Для удобства сравнения оригинальная формула Сихволы (1.38) переписана [107] для случая анизотропного композита с регулярно ориентированными несферическими частицами:

$$\frac{p(\chi_{\text{ВКЛ}} - \chi_{\text{КОМ}})}{1 + N\chi_{\text{ВКЛ}} + N(p_c^{-1} - 1)\chi_{\text{КОМ}}} = \frac{(1 - p)\chi_{\text{КОМ}}}{1 + N(p_c^{-1} - 1)\chi_{\text{КОМ}}}. \quad (1.39)$$

Можно показать [108], что при такой записи параметр структуры  $A$  связан с порогом протекания и форм-фактором  $A = N(p_c^{-1} - 1)$ . При этом параметры модели Сихволы являются теми же параметрами, что и в модели Оделевского, с ясным физическим смыслом.

Модель Сихволы весьма универсальна и уравнение (1.39) может быть превращено в формулу МГ (1.32) и Брюггемана (1.33) с помощью выбора соответствующего порога протекания [108]. Формула Оделевского (1.37) также является частным случаем (1.39) при  $p < p_c$ , но лишь при бесконечном контрасте восприимчивости компонентов:  $\chi_{\text{ВКЛ}} \rightarrow \infty$ . В отличие от формулы Оделевского (1.37) формула Сихволы (1.39) справедлива при  $0 < p < 1$  и учитывает неоднородное

взаимодействие между включениями.

Основные формулы теории ФМР, такие как формула Киттеля, законы Снука и Аше, справедливы для отдельно взятой ФМ частицы. Для количественного анализа магнитной проницаемости необходимо найти формулу смешения, корректно восстанавливающую собственную магнитную проницаемость включений. При этом формула смешения должна выполняться и для диэлектрической, и для магнитной проницаемостей во всем диапазоне частот и независимо от приложенного внешнего магнитного поля. Таким образом, задача восстановления собственной магнитной проницаемости включений является определяющей для анализа магнитного СВЧ спектра композитных материалов.

### **1.3 Измерения СВЧ магнитных свойств материалов**

Для исследования СВЧ свойств магнитных материалов часто используют метод ФМР [109–112]. Он представляет собой измерения магнитных потерь в материале на фиксированной частоте при изменении внешнего магнитного поля. Метод обладает высокой чувствительностью измерений, позволяет измерять образцы малых размеров и легко изменять ориентацию измеряемых образцов, однако обладает рядом недостатков.

Во-первых, измерения проводят в резонаторе, и метод не пригоден для измерений в широком диапазоне частот. Во-вторых, не всегда существует возможность определить, намагничен ли образец до насыщения. Обычно подобные измерения проводят на частоте около 10 ГГц. При этом некоторые композитные материалы обладают частотой ФМР, превышающей частоту измерений метода. В таком случае интерпретация полученных данных может быть некорректна. Результаты измерений на более высоких частотах могут быть искажены из-за наличия скин-эффекта. В-третьих, особый интерес представляют свойства размагниченных материалов в связи с тем, что для большинства СВЧ практических применений материалы используются в размагниченном состоянии.

Для определения статических магнитных свойств материалов обычно используют методы магнитометрии. Вибрационный магнитометр позволяет определять магнитный момент исследуемого образца в зависимости от намагничивающего поля. Таким образом, может быть измерена кривая намагничивания и определены намагниченность насыщения, остаточная намагниченность и поле анизотропии. Метод обладает высокой чувствительностью по магнитному моменту, однако требует точных знаний размеров и толщины исследуемого образца. В случае исследования тонких ФМ плёнок толщина плёнки может быть неизвестна, или плёнка может быть неоднородной по толщине.

Основным методом исследования магнитных свойств материалов, используемым в работе, является измерение частотной зависимости комплексной магнитной проницаемости. Существует множество методов измерения СВЧ диэлектрической  $\varepsilon = \text{Re}(\varepsilon) - i \text{Im}(\varepsilon)$  и магнитной  $\mu = \text{Re}(\mu) - i \text{Im}(\mu)$  проницаемостей, также называемых материальными параметрами. Метод выбирают, исходя из формы и размеров измеряемого образца, частотного диапазона и ожидаемых значений проницаемостей.

Образцы, имеющиеся в малом количестве или обладающие низкими значениями потерь, измеряют с помощью резонаторных методов, например, с помощью метода ФМР [109]. Магнитную проницаемость тонких плёнок на жесткой подложке часто измеряют с помощью микрополосковой линии [18]. Квазиоптические методы [34] позволяют проводить измерения материальных параметров на частотах выше 20 ГГц и избежать погрешности, связанной с зазором между стенками линии и образцом.

В диссертационной работе использован метод, основанный на измерениях коэффициентов отражения (КО) и прохождения (КП), и получивший название метода Николсона–Росса–Уира (НРУ) [113, 114]. Преимуществом данного метода является то, что с помощью него возможно одновременное измерение материальных параметров в проходной измерительной линии, при этом

перестройка измерительного тракта не требуется. Вследствие этого снижаются как трудоемкость проводимых измерений, так и погрешность, возникающая при перестройке параметров тракта. На сегодняшний день метод НРУ в коаксиальной линии является самым распространенным методом для измерений материальных параметров СВЧ за счет легкости одновременного измерения КО и КП с помощью векторных анализаторов цепей (ВАЦ), получивших широкое распространение, и доступности воздушных коаксиальных линий, которые являются наилучшим вариантом для использования в качестве проходной измерительной ячейки. Однако, несмотря на многие положительные моменты, стоит отметить, что данный метод характеризуется меньшей чувствительностью к магнитной проницаемости, по сравнению с методами, где образец размещается на короткозамыкателе.

Материальные параметры образца, измеряемого методом НРУ, могут быть найдены из входного импеданса  $Z_{\text{вх}}$  и КП  $T$  с помощью соотношений [115]:

$$Z^2 = (Z_{\text{вх}} + 1) \frac{(Z_{\text{вх}} + 1)(T^2 - 2) \pm 2(Z_{\text{вх}} - 1)}{T^2(Z_{\text{вх}} + 1)^2 + 4T^2(Z_{\text{вх}} + 1) + 4(T^2 - 1)}, \quad \text{th}(i\eta) = Z \frac{Z_{\text{вх}} - 1}{Z^2 - Z_{\text{вх}}}, \quad (1.40)$$

где  $\eta = 2\pi\sqrt{\varepsilon\mu}d/\lambda$  – безразмерная величина, характеризующая оптическую толщину образца,  $Z = \sqrt{\mu/\varepsilon}$  – характеристический импеданс образца. Знак «плюс» или «минус» в (1.40) выбирают таким образом, чтобы действительная часть характеристического импеданса  $Z$  была неотрицательна. КО  $R$  от образца связан с входным импедансом  $Z_{\text{вх}}$  соотношением:

$$R = \frac{Z_{\text{вх}} - 1}{Z_{\text{вх}} + 1}. \quad (1.41)$$

Ошибки при измерениях материальных параметров могут быть вызваны погрешностями в определении толщины образца, модуля и фазы КО и КП. Современные ВАЦ имеют малые собственные погрешности, и к ошибкам измерений приводят, в основном, неоднородности измерительного тракта. Снизить их влияние на результат измерений позволяет использование калибровочных процедур.

В основе калибровочных процедур лежит использование связи между истинными значениями КО и КП измеряемых объектов и измеряемыми КО и КП, на которые влияют присутствующие в линии неоднородности. Связь между измеряемым  $R_{\text{изм}}$  и истинным  $R_{\text{ист}}$  КО описывают формулой Мейсона [116]:

$$R_{\text{изм}} = W_1 + \frac{W_2 R_{\text{ист}}}{1 - W_3 R_{\text{ист}}}. \quad (1.42)$$

Здесь  $W_1$  представляет собой КО от эквивалентной неоднородности. Коэффициент  $W_2$  равен КП при двукратном прохождении через неоднородность. Величина  $W_2$  учитывает затухание в тракте между неоднородностью и измеряемым объектом. Коэффициент  $W_3$  равен обратному КО от неоднородности в направлении измеряемого объекта.

Существует множество калибровочных процедур для проходных измерительных линий. В диссертационной работе использована *TRL (Through–Reflection–Line)* калибровка [117], состоящая из трёх калибровочных измерений *S*-параметров: прямое измерение без измерительной ячейки (*Through*), измерение с короткозамыкателями вместо ячейки (*Reflection*) и измерение измерительной ячейки без образца (*Line*). Такие измерения позволяют определить истинные значения КО и КП измеряемого образца с помощью коэффициентов формулы Мейсона (1.42). Параметры калибровочных стандартов, используемых при выполнении калибровочных измерений, обычно определяются производителем с высокой точностью. Основным недостатком *TRL* калибровки является возникновение сингулярности при математической обработке данных на частотах, на которых длина измерительной ячейки кратна половине длины волны. Данная проблема решается путём использования измерительных ячеек различных некрatных длин при проведении калибровки.

В данной работе предлагается проводить измерения методом НРУ в коаксиальной ячейке при приложении внешнего магнитного поля. Первыми работами по исследованию частотной зависимости СВЧ магнитной проницаемости

при приложении внешнего магнитного поля были работы [18, 101]. В работах исследованы образцы на основе тонких ФМ плёнок. В [101] измерения проведены только при одном значении внешнего магнитного поля. В [18] для исследования поведения магнитной проницаемости в поле применяли микрополосковую измерительную линию, однако она имеет более узкий частотный диапазон измерений и требует большего размера катушек для создания однородного магнитного поля в области расположения образца по сравнению с коаксиальными измерениями.

Важной проблемой при анализе данных измерений при приложении внешнего поля является задача учёта влияния размагничивания. Внешнее магнитное поле может размагничиваться на коаксиальном образце как на едином целом. Из-за наличия размагничивающих полей вместо внешнего магнитного поля  $H_{внеш}$  необходимо использовать поле внутри образца  $H_i$ , уменьшенное за счет размагничивания [118]. Это поле зависит от форм-фактора образца  $N$  и его статической магнитной восприимчивости  $\chi_{cm}$  в направлении внешнего постоянного поля:

$$H_i = H_{внеш} / (1 + 4\pi\chi_{cm}N). \quad (1.43)$$

Коэффициенты размагничивания коаксиальных шайб в направлении коаксиальной оси рассчитаны в [41, 42], см. уравнение (1.3). Учет размагничивания позволяет количественно рассчитать магнитные характеристики образца, такие как намагниченность насыщения и поле анизотропии. При намагничивании образца до насыщения, магнитная восприимчивость  $\chi_{cm}$  в направлении внешнего постоянного поля уменьшается до нуля. Таким образом, размагничивание перестает влиять на измерения, когда образец находится в насыщенном состоянии.

Проблема влияния размагничивания на композитные материалы изучена в работах Маттея [119–121], где подробно исследованы зависимости частоты ФМР и форм-фактора композитного образца от концентрации включений. Тем не менее, влияние размагничивания на СВЧ магнитную проницаемость композитов,

измеренную при приложении внешнего магнитного поля, ранее не было исследовано.

Обычно исследования СВЧ магнитной проницаемости композитов, проводимые большинством исследователей, сводятся либо к восстановлению собственной магнитной проницаемости включений [28, 100, 104, 122, 123], либо к аппроксимации эффективной магнитной проницаемости композитов дисперсионными законами [30–32, 34, 78, 79]. При этом надежных методов для определения физических механизмов, приводящих к появлению того или иного пика магнитных потерь, в литературе не найдено.

В работах [30] и [78] авторы проводили анализ магнитных свойств композитных материалов и ферритов с помощью аппроксимации частотной зависимости магнитной проницаемости двумя линиями лоренца. Авторы предполагали, что наблюдаемый низкочастотный пик магнитных потерь вызван движением доменных границ, а высокочастотный – ферромагнитным резонансом, однако явного подтверждения данной гипотезе в работах не представлено. Проведение дополнительных измерений при наличии внешнего магнитного поля могло бы помочь в интерпретации наблюдаемых магнитных потерь.

В последнее время проводились ряд исследований, содержащих измерения магнитной проницаемости материалов в зависимости как от частоты, так и от внешнего поля [18, 27, 31, 124–128]. Большинство подобных работ посвящено исследованию тонких ФМ плёнок, а не композитных материалов, см., например, работы [18, 124, 126–128]. Пленки обладают более простой интерпретацией физических механизмов по сравнению с композитными материалами, кроме того диссертационная работа посвящена исследованию свойств именно композитов.

В части из найденных в литературе работ, измерения магнитной проницаемости в зависимости от частоты и поля проведены в микрополосковой измерительной линии, см., например, работы [18, 127, 128]. Измерения в микрополосковых линиях имеют более узкий частотный диапазон по сравнению с

коаксиальными, что не позволяет наблюдать целиком весь спектр магнитной проницаемости и ограничивает возможности численного анализа. В работе [128] качество измеренных данных становится неудовлетворительным на частотах выше 8 ГГц. В работе [127] измерения в поле проводились в коаксиальной линии, однако диапазон измерений ограничен сверху 12 ГГц, и в полях более 2 кЭ не измерена большая часть спектра. В [18] размер измеряемых образцов плёнок составлял около 50мм x 5мм. Для таких измерений внешнее магнитное поле должно быть однородным в довольно большом объеме пространства, что затрудняет изготовление катушки и ограничивает максимальную напряженность поля.

Часто подобные измерения ограничиваются одним измерением в магнитном поле, что не позволяет подробно исследовать переход в намагниченное состояние и также ограничивает возможности анализа, см., например, работы [31, 125]. Тем не менее, даже измерение при одной величине внешнего магнитного поля позволило интерпретировать механизмы формирования измеряемой магнитной проницаемости [31].

В работе [129] проведены СВЧ измерения магнитной проницаемости композитных материалов, наполненных микропроводами, при приложении магнитного поля, однако количественный анализ измеренных зависимостей отсутствовал. Кроме того, в работе исследован композитный материал только с одной концентрацией микропроводов, что не позволяет исследовать их собственные свойства. В работе [27] исследована СВЧ магнитная проницаемость композитных материалов, наполненных наночастицами кобальта, при приложении внешнего магнитного поля. Для описания эффективной магнитной проницаемости в нулевом внешнем магнитном поле при различных концентрациях включений использованы формулы смещения МГ (1.31) и Брюггемана (1.33), однако измеренные данные описывались формулами смещения с низкой точностью. В магнитном поле также исследован композитный материал только одной концентрации включений.

Таким образом, во многих работах анализ высокочастотного спектра магнитной проницаемости носит качественный характер или вовсе отсутствует. Ни в одной из рассмотренных выше работ не учитывалось влияние размагничивания на магнитную проницаемость образцов, измеренную при приложении внешнего магнитного поля. Также в литературе не обнаружено попыток восстановления собственной магнитной проницаемости включений при приложении внешнего поля. Проблема анализа высокочастотной дисперсии магнитной проницаемости магнитных материалов до сих пор не решена, хотя на ее решение затрачены большие усилия.

#### **1.4 Постановка задачи**

Таким образом, измерения магнитной проницаемости могут быть проведены в коаксиальной измерительной линии стандартным методом НРУ в широком диапазоне частот: от 100 МГц до 18 ГГц. При этом чувствительность измерений довольно высока, т.к. методы калибровки коаксиальной измерительной линии хорошо изучены. Основным преимуществом для проводимых исследований является то, что измерительная ячейка может быть помещена в катушку. С помощью катушки легко можно создать однородное постоянное магнитное поле, направленное параллельно коаксиальной оси и перпендикулярно переменному магнитному полю, имеющее величину в несколько кЭ и исследовать зависимости магнитной проницаемости и от частоты, и от внешнего поля. Методика может позволить измерять проницаемость композитных материалов и тонких плёнок на гибкой подложке [101].

Описание разработки модификации методики измерений СВЧ магнитной проницаемости при приложении внешнего магнитного поля приведено во втором разделе диссертационной работы. Там же рассмотрены исследуемые материалы, представляющие собой композиты и тонкие ФМ плёнки, и другие методы измерений СВЧ магнитных характеристик материалов, используемые в работе.

Тонкие ФМ плёнки имеют более простую интерпретацию физических механизмов по сравнению с композитными материалами. Поэтому сначала предлагаемая методика верифицирована на тонких ФМ плёнках на гибкой подложке. Исследованию свойств тонких плёнок посвящён третий раздел диссертации. Исследовано влияние размагничивания на результат измерений, найдены численные значения магнитных характеристик тонких плёнок и проведено сравнение полученных результатов со справочными данными и результатами других измерений.

Т.к. классическая теория ФМР рассматривает магнитные свойства отдельных ФМ частиц, анализ магнитных свойств композитов необходимо проводить применительно к собственной магнитной проницаемости частиц, а не к эффективной проницаемости композитов. Для этого необходимо восстановить собственную проницаемость, используя известные формулы смешения, рассмотренные в подразделе 1.2. Четвёртый раздел посвящен исследованию частотной зависимости диэлектрической и магнитной проницаемостей исследуемых композитов и выбору формулы смешения, корректно восстанавливающей собственную магнитную проницаемость включений.

Измерения магнитной проницаемости при приложении внешнего поля дают дополнительную возможность для исследования магнитных свойств материалов. Например, увеличение внешнего магнитного поля приводит к исчезновению доменной структуры, а, следовательно, и к уменьшению пиков магнитных потерь, связанных с доменными модами и движением доменных границ. Влияние скин-эффекта на магнитную проницаемость более существенно на высоких частотах и не исчезает при приложении поля [18].

Существует возможность обнаружить пики магнитных потерь, которые не видны ни в отсутствии внешнего поля, ни в намагниченном состоянии, в том числе при измерениях методом ФМР. По поведению пиков во внешнем поле можно определить физические механизмы, которые их вызывают. Пик магнитных потерь,

связанный с ФМР, при приложении внешнего поля сдвигается в более высокие частоты и может быть описан формулой Киттеля (1.15).

Широкий диапазон измерений позволяет исследовать свойства композитных материалов при изменении внешнего магнитного поля в широких пределах, подробнее изучить переход из размагниченного в намагниченное состояние, связать магнитные характеристики в размагниченном и намагниченном состоянии и определить физические механизмы, ответственные за возникновение пиков магнитных потерь, формирующих СВЧ спектр магнитной проницаемости композитных материалов. Такие данные могут иметь большое значение для понимания магнитной структуры и динамических магнитных свойств малых магнитных частиц.

Пятый раздел работы 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. В разделе исследованы возможность восстановления собственной магнитной проницаемости включений во внешнем магнитном поле и проблема влияния размагничивания на результат измерений.

## **2 ПОЛУЧЕНИЕ МАТЕРИАЛОВ И МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЙ**

Данный раздел посвящён описанию используемых методов измерений и технологий изготовления исследуемых материалов. В разделе описаны технологии изготовления исследуемых тонких ФМ плёнок на гибкой подложке, порошков ФМ материалов и коаксиальных образцов на их основе. Исследования СВЧ свойств данных материалов представлено в разделах 3 – 5. Подраздел 2.3 посвящён описанию модификации метода Николсона–Росса для измерений магнитной проницаемости коаксиальных образцов во внешнем магнитном поле.

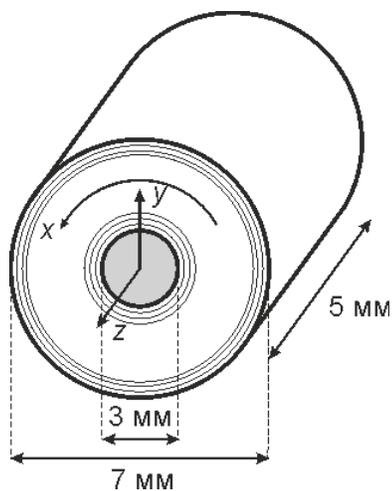
### **2.1 Изготовление образцов тонких ферромагнитных плёнок**

В данном подразделе описана технология изготовления образцов из тонких ФМ плёнок на гибкой подложке. Проверка методики измерения СВЧ свойств проведена на плёнках в связи с более простой интерпретацией физических механизмов и простотой измерений при приложении внешнего магнитного поля по сравнению с композитными материалами. В качестве объектов исследования были выбраны плёнки супермаллоя и железа на гибкой подложке. Плёнки изготовлены в лаборатории нанотехнологии композиционных материалов и тонкопленочных структур ИТПЭ РАН. Исследованию СВЧ магнитных свойств тонких плёнок посвящен третий раздел диссертационной работы.

Плёнки супермаллоя представляют интерес для проводимого исследования, т.к. обладают малым полем насыщения, высокими магнитными потерями в области сотен Мегагерц и малым магнитоупругим эффектом. Супермаллой представляет собой сплав никеля (79%), железа (17%) и молибдена (4%). Плёнки изготовлены методом магнетронного напыления супермаллоя на гибкую лавсановую подложку толщиной 12 мкм. Напыление было проведено в атмосфере аргона с 5% примесью кислорода при комнатной температуре. Толщина плёнки определена с помощью атомно-силовой микроскопии и составляет 160 нм.

Для исследования влияния постоянного размагничивающего поля на результат измерений во внешнем магнитном поле выбраны железные плёнки, т.к. они обладают более высоким полем насыщения, чем плёнки супермаллоя. Плёнки получены методом магнетронного напыления железа на гибкую лавсановую подложку толщиной 12 мкм. Напыление проводилось в Ar+N<sub>2</sub> атмосфере при комнатной температуре и давлении 10<sup>-4</sup> Тор. Содержание азота в камере составляло 10%. Из-за добавления азота железо в плёнках содержит растворенный азот и далее плёнка обозначается как Fe-N. Толщина слоя металла составляет 270 нм.

Готовая плёнка представляет собой лист размерами 20x60 см. Для измерений плёнки в коаксиальной линии из листа были вырезаны полосы шириной 5 мм и склеены между собой в полосу длиной порядка 150 см. Полосы скручены в рулон под коаксиальную ячейку с внутренним и внешним диаметрами 3 и 7 мм. Схематичное изображение и фотография коаксиального образца из тонкой плёнки показаны на рисунке 2.1.



(а)



(б)

Рисунок 2.1 – Схематичное изображение (а) и фотография (б) коаксиального образца из тонкой плёнки для измерений СВЧ магнитной проницаемости

При изготовлении образцов таким способом можно получить четыре типа образцов: образцы, скрученные из полос, вырезанных в двух взаимно перпендикулярных направлениях, и образцы с разной намоткой (металлом *внутри* или металлом *наружу*). Направление, параллельное оси барабана магнетрона,

будем называть *вертикальным* и обозначать буквой *v*, а перпендикулярное – *горизонтальным* и обозначать буквой *h*. Образцы, скрученные металлом внутрь, будем обозначать буквой *i* (*inward*), металлом наружу – буквой *o* (*outward*). Обозначения и способы изготовления образцов приведены в таблице 2.1. Измерения СВЧ магнитной проницаемости образцов четырёх типов позволяет получать количественные характеристики анизотропии и магнитоупругости плёнок [130].

**Таблица 2.1** – Обозначения и способы изготовления коаксиальных образцов из тонких плёнок на гибкой подложке

Обозначение образца	Способ изготовления образца из плёнки
<i>hi</i>	Пленка вырезана в направлении, перпендикулярном оси барабана магнетрона, и скручена металлом внутрь
<i>ho</i>	Пленка вырезана в направлении, перпендикулярном оси барабана магнетрона, и скручена металлом наружу
<i>vi</i>	Пленка вырезана в направлении, параллельном оси барабана магнетрона, и скручена металлом внутрь
<i>vo</i>	Пленка вырезана в направлении, параллельном оси барабана магнетрона, и скручена металлом наружу

## 2.2 Изготовление образцов композитных материалов

В подразделе рассмотрены методы получения материала включений и изготовления композитных материалов. В качестве объекта исследования выбраны композиты на основе парафиновой матрицы, наполненные сферическими и пластинчатыми частицами сендаста. Сплав сендаста ( $Al_{0,054}Si_{0,096}Fe_{0,85}$ ) выбран в качестве исследуемого материала как перспективный наполнитель для композитов, которые могут быть использованы в СВЧ диапазоне. Исследуемые композиты обладают малым полем насыщения и высокими СВЧ магнитными свойствами. Малое поле насыщения позволяет исследовать композиты на разных стадиях

намагничивания даже в магнитном поле, создаваемом катушкой. Магнитные потери композитов, наполненных пластинчатыми включениями, лежат в области сотен МГц и при намагничивании сдвигаются в более высокие частоты, что позволяет увидеть весь спектр целиком на разных стадиях намагничивания образца. Экспериментальному исследованию СВЧ магнитных свойств данных композитов посвящены четвёртый и пятый разделы диссертационной работы.

Исследованы коммерчески доступные порошки сендаста. Порошки сферической формы получены с помощью водного распыления расплавленного сендаста. Гранулометрия полученного порошка была измерена с помощью лазерного анализатора размеров Analyzette 22. Средний диаметр сфер составляет около 4,2 мкм. Фотография на сканирующем электронном микроскопе (СЭМ) и кривая гранулометрического распределения (зависимость функции распределения  $Q$  от диаметра включения  $d$ ) сферического порошка показаны на рисунке 2.2.

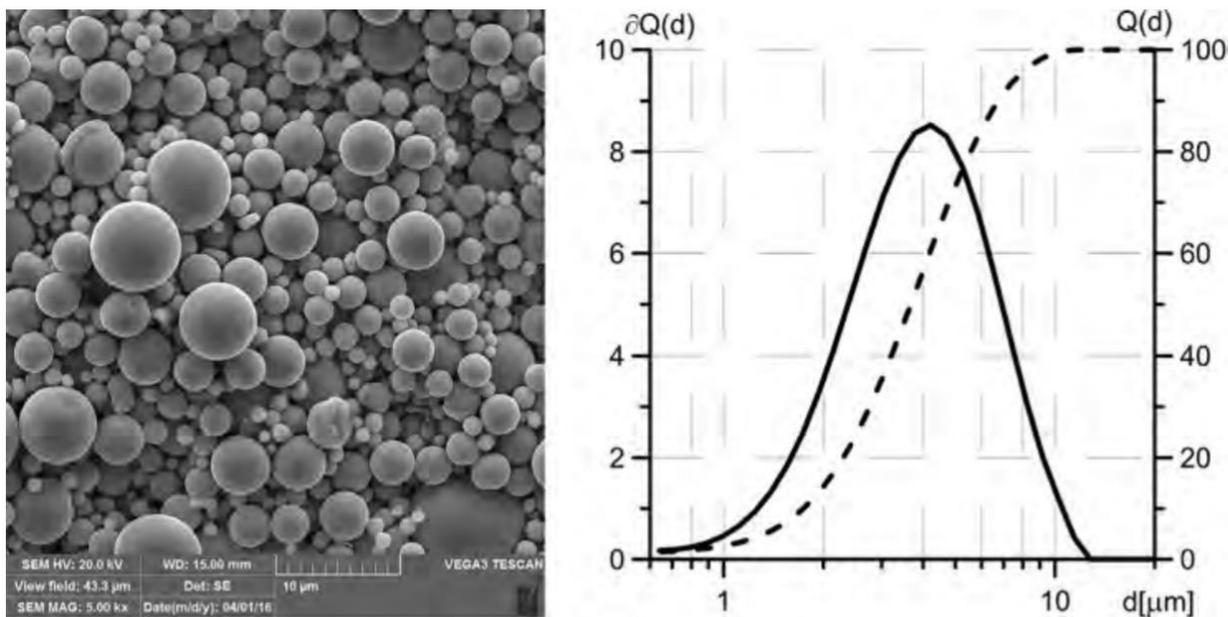


Рисунок 2.2 – (а) Фото со сканирующего электронного микроскопа и (б) кривые гранулометрического распределения  $Q$  и плотности распределения  $\partial Q(d)$  для сферических частиц сендаста. Распределение хлопьев по размеру  $Q(d)$  и плотность распределения  $\partial Q(d)$  представлены штриховой и непрерывной линиями, соответственно

Пластинчатые частицы сендаста получены путем размола сферического порошка (рисунок 4.1) на шаровой мельнице в среде этанола. Полученный после

механической обработки порошок был разделен на несколько фракций. Композиты, наполненные пластинчатыми частицами, получают с использованием фракции, разделенной между ситами с размером ячеек 63 мкм и 40 мкм. Фотография, полученная с помощью СЭМ, и кривая гранулометрического распределения показаны на рисунке 2.3. Стоит отметить, что данные Analysette 22 о размере верны только для сферических частиц. Для других форм зарегистрированный размер зависит от формы частиц. Средняя толщина пластинчатых частиц составляет около 1 мкм.

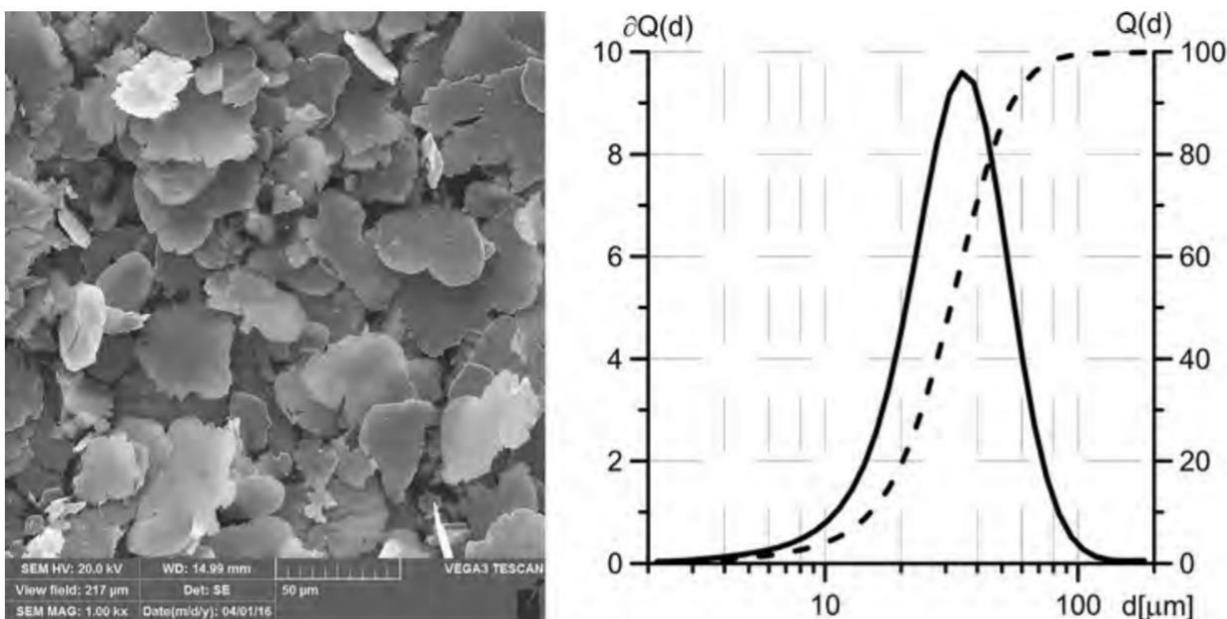


Рисунок 2.3 – (а) Фото со сканирующего электронного микроскопа и (б) кривые гранулометрического распределения  $Q$  и плотности распределения  $\delta Q(d)$  для хлопьев сендаста. Распределение хлопьев по размеру  $Q(d)$  и плотность распределения  $\delta Q(d)$  представлены штриховой и непрерывной линиями, соответственно

В качестве матрицы композитного образца использован парафин, т.к. он обладает необходимыми физико-механическими свойствами: простота использования, низкая температура плавления и высокий уровень пластичности.

Композиты изготовлены путем смешивания расчетных количеств порошка сендаста и парафина. К парафину массой  $m_n$  добавляли исследуемый порошок сендаста в количестве  $m_m$ . Массу измеряли с помощью аналитических весов ACCULAB ALC-110d4. Ошибка в определении массы составляет  $\pm 0,2$  мг.

Полученную смесь нагревали под лампой накаливания в течение 5 минут до расплавления парафина, после чего порошок перемешивали с расплавленным парафином до его остывания и затвердевания.

Затем смесь прессовали в виде коаксиальных шайб различной толщины, соответствующих стандартной коаксиальной линии с внутренним диаметром  $d_1=3$  мм и внешним  $d_2=7$  мм. При изготовлении образцов велика вероятность образования воздушных пор, что может повлиять на содержание наполнителя в образце. Кроме того, часть смеси может быть утеряна при закладывании в пресс-форму или при помещении образца в измерительную ячейку. Для контроля объемной доли наполнителя  $p$  в полученном образце измеряли конечную массу образца  $m_0$  и его толщину  $d$ . Также производится контроль плотности изготовленного образца, которую определяют по формуле:

$$\rho = \frac{m_0}{d\pi S}, \quad (2.1)$$

где  $S=(d_2/2)^2-(d_1/2)^2$  – площадь сечения образца.

Объемная доля металла в образце составляет:

$$p = m_1 / (\rho_m d S), \quad (2.2)$$

где  $\rho_m$  – плотность включений, равная  $6,9$  г/см<sup>3</sup> для сендаста,  $m_1 = m_0 m_m / (m_n + m_m)$  – масса наполнителя в получившемся образце. Объемное содержание воздушных пор в образце может быть оценено как  $p_3 = 1 - p - p_2$ , где  $p_2$  – объемная доля парафина в образце. Объемное содержание воздушных пор во всех изготовленных образцах не превышает 3%.

Погрешность определения объемной концентрации включений в образце зависит от погрешностей измерений масс образца и компонентов, размеров образца и плотности включений. Ошибка измерения массы мала, порядка  $\pm 0,2$  мг, а измеряемые массы образцов и компонентов превышают 30 мг. Ошибка в определении плотности материала включений сильнее влияет на погрешность при высоких концентрациях наполнителя. Перед измерениями S-параметров образцы

прессуют в коаксиальной линии для полного заполнения образцом сечения измерительной ячейки и уменьшения неконтролируемых зазоров между образцом и электродами ячейки. Это также приводит к уменьшению отличия длин внешнего и внутреннего диаметров коаксиальных образцов от теоретических значений ( $d_1=3$  мм,  $d_2=7$  мм). Толщину образцов измеряют микрометром после прессовки в коаксиальной линии и проведения измерений S-параметров. Погрешность в измерении толщины составляет порядка  $\pm 0,01$  мм. Величины погрешностей при концентрациях включений 3, 9 и 58 % составляют  $(3,0\pm 0,2)$  %,  $(9,0\pm 0,3)$  %,  $(58,0\pm 1,5)$ %.

Максимально достижимая концентрация включений в образце, изготовленном по указанной технологии, ограничена хрупкостью образца. Максимальная концентрация для пластинчатых частиц составляет около 15% об., для сферических – 70%.

Микрофотография образца, полученная с помощью сканирующего электронного микроскопа, с объемной долей включений 4% показана на рисунке 2.4. Видно, что образец содержит кластеры частиц. Они отмечены на рисунке красным цветом. Включения в образце распределены случайным образом по всем направлениям, и образец можно считать изотропным.

Для исследования влияния размагничивания на измерения СВЧ магнитной проницаемости композитов, см. подраздел 5.3, изготовлены образцы с анизотропным распределением частиц. Анизотропные композиты изготовлены из изотропных образцов с объемной долей включений 4%. Изотропные образцы помещают в герметичную коаксиальную форму. Форму с образцом нагревают до 100 °С в течение одной минуты до расплавления парафинового связующего. Во время процесса нагрева форма медленно вращается, чтобы избежать оседания частиц. Затем форму с расплавленным образцом помещают внутрь электромагнита и увеличивают магнитное поле до 10 кЭ. Форму также вращают внутри электромагнита в течение пяти минут, пока парафин в образце не затвердеет.

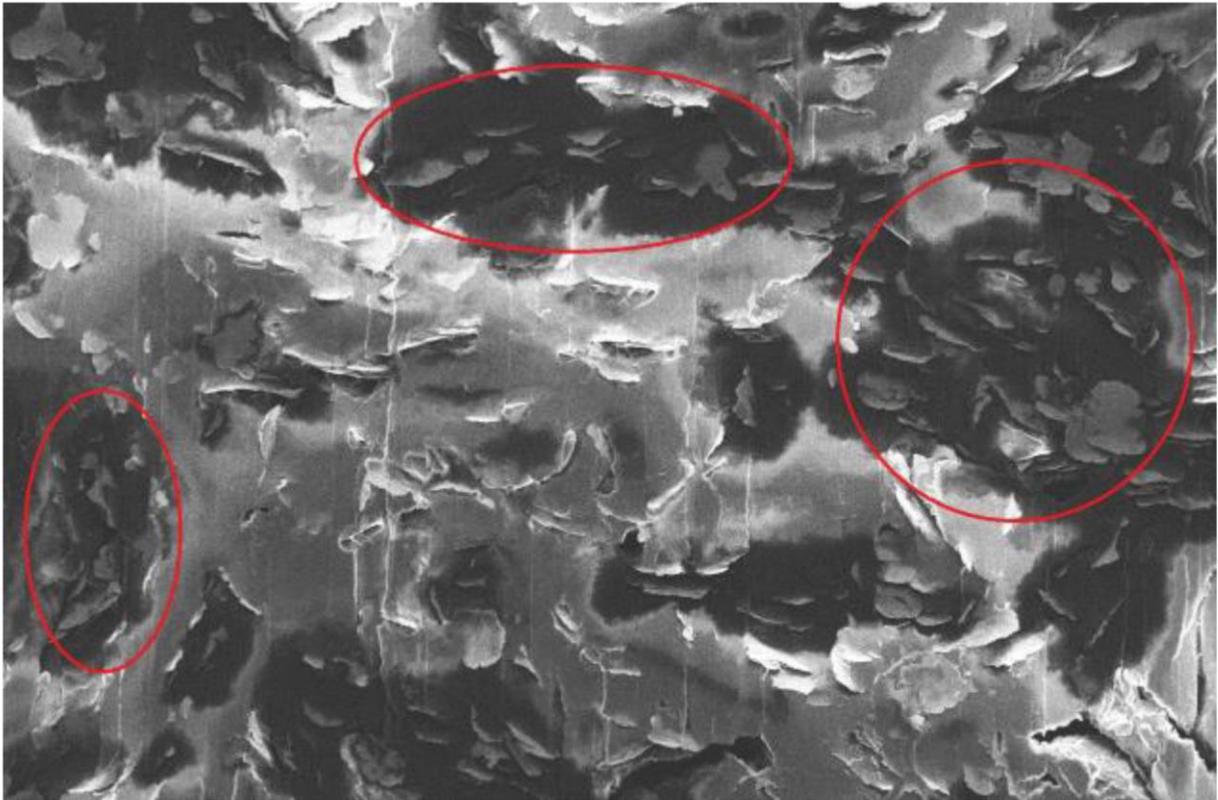


Рисунок 2.4 – Фотография среза исследуемого образца композита, полученная с помощью сканирующего электронного микроскопа. Объёмная доля включений в образце составляет 4%.

Изготовлены два анизотропных образца с различным распределением частиц. Первый образец помещали и вращали в электромагните, как показано на рисунке 2.5 (а). При таком положении образца внешнее поле перпендикулярно коаксиальной оси, а пластинчатые частицы в образце ориентированы в плоскости, перпендикулярной коаксиальной оси, см. рисунок 2.5 (б). Положение второго образца в электромагните показано на рисунке 2.5 (в): магнитное поле направлено вдоль коаксиальной оси, вокруг этой же оси осуществляется вращение. В этом случае плоские частицы могут быть ориентированы во всех плоскостях, параллельных коаксиальной оси, см. рисунок 2.5 (г).

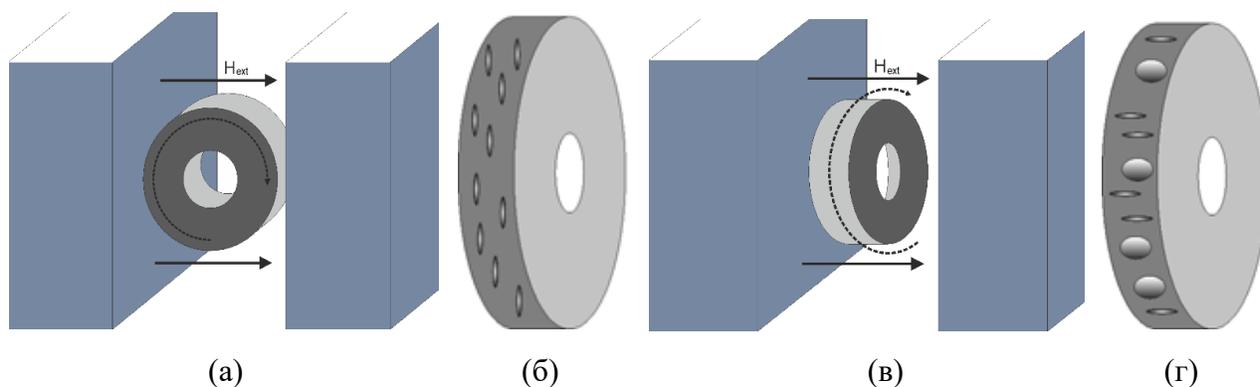


Рисунок 2.5 – Расположение коаксиальных анизотропных образцов в электромагните и ориентация частиц в образце. Первый анизотропный образец (а): частицы лежат в плоскости, перпендикулярной коаксиальной оси (б); второй анизотропный образец (в): частицы лежат вдоль коаксиальной оси (г).

О достижении нужной ориентации частиц свидетельствует внешний вид образцов. Фотографии передней и боковой граней второго анизотропного образца, сделанные при помощи оптического микроскопа, показаны на рисунке 2.6. Пластинчатые частицы сильнее отражают свет с плоской стороны, из-за чего боковая грань второго образца обладает металлическим блеском, а передняя и задняя грани – матовые.

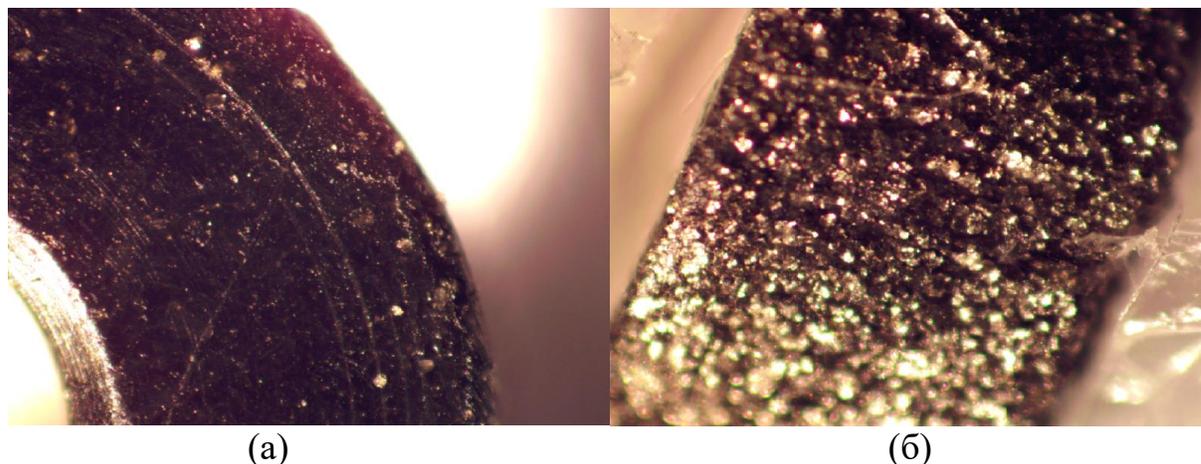


Рисунок 2.6 – Внешний вид изготовленных анизотропных образцов: (а) передняя грань анизотропного образца с частицами, ориентированными вдоль коаксиальной оси; (б) боковая грань анизотропного образца с частицами, ориентированными вдоль коаксиальной оси

Описанная методика позволяет изготавливать изотропные и анизотропные образцы из композитов для измерений частотной зависимости материальных параметров в коаксиальной ячейке. При этом методика позволяет контролировать плотность образцов и объемное содержание наполнителя и воздушных пор.

## 2.3 Методы измерения магнитных характеристик образцов

Данный подраздел посвящён разработке модификации метода Николсона–Росса для измерений магнитной проницаемости коаксиальных образцов в зависимости не только от частоты, но и от внешнего магнитного поля.

Частотные зависимости СВЧ магнитной и диэлектрической проницаемостей измерены в частотном диапазоне от 0,1 до 20 ГГц методом прохождения–отражения (Николсона–Росса–Уира (НРУ)) [113] в коаксиальной линии векторным анализатором цепей Agilent E8363B. В качестве измерительной линии использована коаксиальная ячейка Rosenberger стандарта 7/3 мм длиной 26,4 мм. Метод позволяет находить диэлектрическую и магнитную проницаемость образца из измеренных комплексных коэффициентов отражения и прохождения без перестройки измерительного тракта. Схема и фотография измерительного стенда показаны на рисунке 2.7.

В рассматриваемой методике измерений использована *TRL* (*Through–Reflection–Line*) калибровка [117], состоящая из трёх калибровочных измерений *S*-параметров: прямое измерение без измерительной ячейки (*Through*), измерение с короткозамыкателями вместо ячейки (*Reflection*) и измерение измерительной ячейки известной длины (*Line*). Достоинством *TRL* калибровки является использование калибровочных стандартов, параметры которых могут быть определены с высокой точностью. В рассматриваемой методике использованы калибровочные стандарты фирмы Rosenberger, характеристики которых указаны производителем. Основным недостатком *TRL* калибровки – это вырождение системы уравнений, решаемой для нахождения истинных значений КО и КП, на частотах, где длина измерительной ячейки кратна половине длины волны.

Для исключения этого эффекта в используемой методике проводятся калибровочные измерения четырёх пустых ячеек разных длин. При калибровке использованы измерительные линии Rosenberger, длины которых не кратны друг

другу: 26,4 мм, 33,3 мм, 61,0 мм и 100 мм. Программное обеспечение используемого в измерительном стенде ВАЦ позволяет проводить *TRL* калибровку измерительного тракта и автоматически применять её к измеряемым данным без использования персонального компьютера.

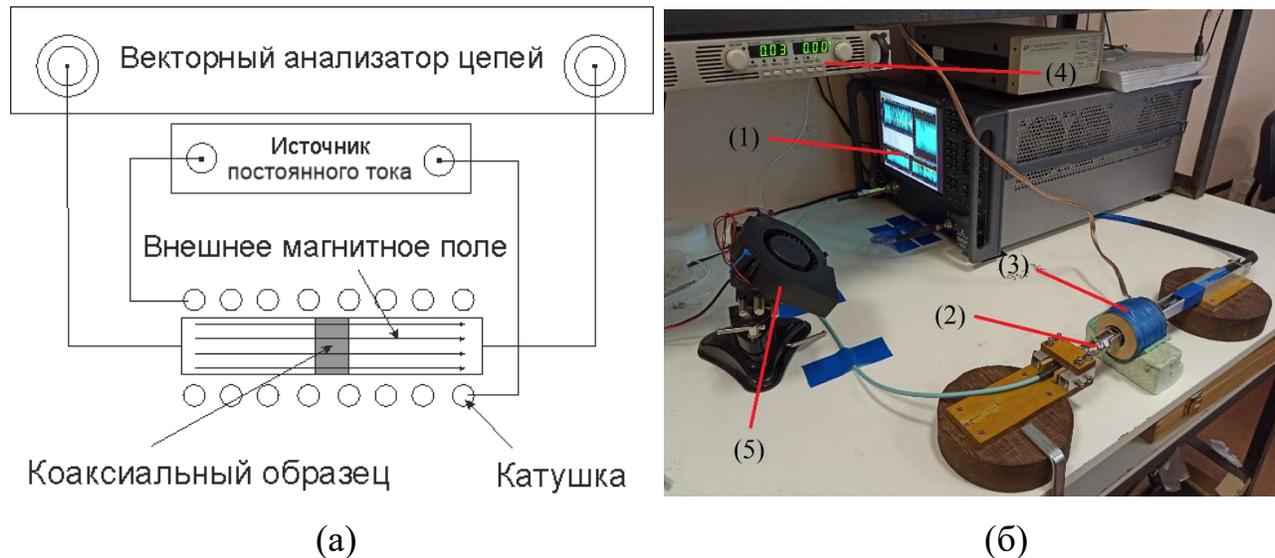


Рисунок 2.7 – Схематичное изображение (а) и фотография (б) стенда для измерения частотных зависимостей СВЧ материальных параметров коаксиальных образцов: (1) – векторный анализатор цепей, (2) – коаксиальная измерительная ячейка, (3) – катушка, (4) – источник постоянного тока, (5) – кулер для охлаждения катушки.

Результат измерения образца представляет собой четыре набора зависимостей *S*-параметров от частоты, полученных при использовании *TRL* калибровок со стандартами разных длин. Частоты, на которых решаемая система вырождается, отличаются для разных наборов данных и зависят от длины линии, используемой при калибровке. В небольшом интервале частот вокруг частоты возникновения неопределённости данные исключаются. В этом интервале используется среднее значение *S*-параметров, измеренных с использованием других калибровок, на которых неопределённость в этом частотном диапазоне отсутствует. С помощью данной методики получены гладкие частотные зависимости *S*-параметров образцов во всем измеряемом диапазоне.

*S*-параметры измерены относительно плоскостей, где соединяется

измеряемый коаксиальный волновод с измерительными портами, относительно которых проведена калибровка векторного анализатора. Так как образец занимает не всю длину измерительной линии, необходимо пересчитать S-параметры, чтобы их фазы отсчитывались от плоскости самого образца.

Для первого порта измеренные параметры  $S_{11}$  и  $S_{21}$  преобразуются следующим образом:

$$\begin{aligned} S'_{11} &= \frac{S_{11}}{\exp(-2 \cdot i \cdot k_0 \cdot b)} \\ S'_{21} &= \frac{S_{21}}{\exp(-i \cdot k_0 \cdot (L_{line} - d))}, \end{aligned} \quad (2.3)$$

где  $b$  – расстояние от плоскости образца до плоскости калибровки,  $k_0 = 2\pi f/c$  – постоянная распространения в воздухе,  $L_{line}$  – длина линии,  $d$  – толщина образца. Аналогично проводится пересчёт S-параметров для второго порта.

Для нахождения частотных зависимостей комплексных диэлектрической и магнитной проницаемостей из пересчитанных КО и КП (2.3) используется метод Николсона–Росса (1.40).

Чтобы обеспечить полное заполнение сечения коаксиальной ячейки и уменьшить влияние воздушных зазоров между образцом и электродами ячейки на измеряемую диэлектрическую проницаемость, образцы композитов подвергают дополнительному прессованию после размещения внутри измерительной ячейки.

Метод Николсона–Росса модифицирован для измерений магнитной проницаемости коаксиальных образцов в зависимости не только от частоты, но и от внешнего магнитного поля. Для проведения подобных измерений ячейку помещают в катушку, подключенную к источнику постоянного тока TDK-Lambda GEN60-25. Максимальное значение силы тока, подаваемое на катушку, составляет 26,25 А. Магнитное поле, создаваемое катушкой, направлено параллельно коаксиальной оси и перпендикулярно СВЧ магнитному полю. При измерении материальных параметров образец находится на центральной оси катушки. Для охлаждения катушки после подачи тока большой силы используется кулер.

Значения напряженности постоянного магнитного поля, создаваемого катушкой, измерены с помощью магнитометра Hirst GM08. Измерена напряженность магнитного поля на центральной оси катушки в зависимости от расстояния до торца катушки при фиксированной силе тока источника. Зависимости напряженности при токе 1, 4 и 10 А показаны на рисунке 2.8 (а). Штриховой вертикальной линией показано примерное расстояние, на котором располагается коаксиальный образец при измерениях материальных параметров.

Измеренная напряженность поля в области расположения образца в зависимости от силы тока источника показана на рисунке 2.8 (б). Максимальная напряжённость магнитного поля, создаваемого катушкой, составляет около 2400 Э. Зависимость напряженности магнитного поля от силы тока аппроксимирована линейной функцией, откуда найден коэффициент пропорциональности, составляющий  $\sim 90$  Э/А.

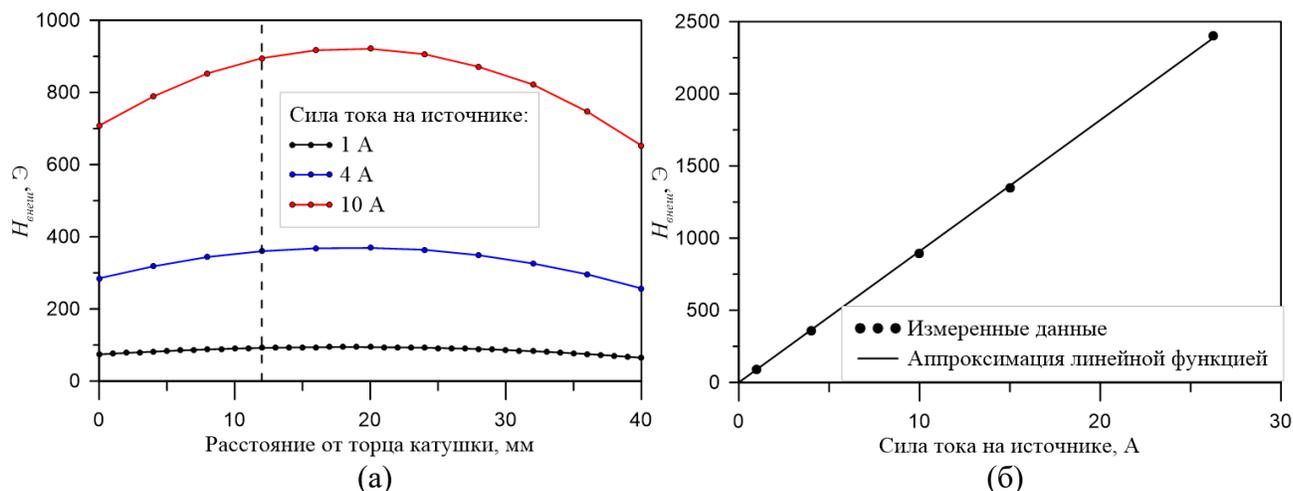


Рисунок 2.8 – Измерения напряженности внешнего поля от расстояния до торца катушки (а) и от силы тока на источнике постоянного тока (б). Примерное положение образца при измерениях материальных параметров указано на рисунке (а) штриховой вертикальной линией

Оценены значения погрешности определения напряженности магнитного поля, в котором расположен образец при измерении материальных параметров. При толщине образца, равной 2 мм, отклонение значений внешнего поля от среднего менее 0,5%, при толщине равной 5 мм – менее 2%.

Для дополнительного исследования магнитных свойств материалов использованы измерения методом ФМР, проведённые в Краснодарском высшем военном училище имени генерала армии С.М. Штеменко. Для измерений использован ЭПР спектрометр "JEOL JES FA-300" с цилиндрическим объемным резонатором с использованием моды  $TE_{011}$ . Измерения проведены резонаторным способом на частоте  $f \approx 9,15$  ГГц с применением обычной модуляционной техники.

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

#### 2.4. Выводы к разделу 2

Тонкие пленки супермаллоя получены методом магнетронного напыления в атмосфере аргона с 5% содержанием кислорода. Тонкие пленки железа получены методом магнетронного напыления в атмосфере  $Ar+N_2$ . Из плёнок вырезаны полосы шириной 3–5 мм и свернуты в рулон под коаксиальную линию стандарта 7/3 мм. Таким образом, изготовлены 4 типа образцов: из полос, вырезанных параллельно и перпендикулярно оси барабана магнетрона; и свёрнутые в рулон металлом внутрь и металлом наружу. СВЧ магнитные свойства данных плёнок исследованы в разделе 3.

Изготовлены коаксиальные образцы композитных материалов на основе парафиновой матрицы, наполненные пластинчатыми и сферическими частицами сендаста. Объемная концентрация включений в коаксиальных образцах составляет от 3 до 12% для образцов с пластинчатыми включениями, от 12 до 56 % – со сферическими. Включения в образце расположены изотропно. Предложена методика изготовления коаксиальных образцов композитных материалов с анизотропной ориентацией включений.

Метод Николсона–Росса модифицирован для измерений диэлектрической и магнитной проницаемости коаксиальных образцов во внешнем магнитном поле.

Частотный диапазон измерений составляет от 0,1 до 20 ГГц, максимальная напряженность внешнего магнитного поля составляет 2400 Э. Дополнительно проведены измерения с помощью метода ФМР и вибрационного магнитометра.

### 3 ИССЛЕДОВАНИЕ СВЧ СВОЙСТВ ТОНКИХ ФЕРРОМАГНИТНЫХ ПЛЁНОК НА ГИБКОЙ ПОДЛОЖКЕ ПРИ ПРИЛОЖЕНИИ ВНЕШНЕГО ПОСТОЯННОГО МАГНИТНОГО ПОЛЯ

Данный раздел посвящен исследованию СВЧ магнитных свойств тонких ФМ плёнок на гибкой подложке. Перед исследованием СВЧ магнитных свойств композитов проведены исследования свойств тонких ФМ плёнок в связи с более простой интерпретацией физических механизмов и простотой измерений при приложении внешнего магнитного поля. Плёнки обладают существенно меньшими значениями полей насыщения, что позволяет подробно исследовать переход из размагниченного в намагниченное состояние. Измерения в магнитных полях, превышающих поле насыщения, позволяют исключить влияние доменной структуры и размагничивания на результат измерений СВЧ магнитной проницаемости. У композитов присутствует распределение частиц по форме и размерам, что приводит к искажению пиков магнитных потерь. Подобные искажения магнитных потерь у плёнок отсутствуют. Исследуемые плёнки обладают меньшей толщиной по сравнению с толщиной частиц и глубиной скин-слоя, что позволяет исключить скин-эффект из рассмотрения. Также образцы на основе тонких ФМ плёнок на гибкой подложке обладают существенными СВЧ магнитными свойствами при малом содержании металла в образце. Полученные на тонких ФМ плёнках результаты могут быть применены к композитным материалам.

Определение магнитных характеристик материала, таких как намагниченность насыщения  $4\pi M_0$ , поле анизотропии  $H_k$  и поле магнитоупругости  $H_y$ , из измеренной частотной зависимости магнитной проницаемости возможно двумя способами.

Первый способ – это аппроксимация зависимости резонансной частоты  $f_{рез}$  от внешнего поля  $H_{внеш}$  формулой Киттеля (1.14). При этом поле  $H_k$  заменяют на общее эффективное поле  $H_{эфф}$ , которое состоит из внешнего постоянного магнитного поля

$H_{\text{внеш}}$ , размагничивающих полей и полей анизотропии  $H_k$  и магнитоупругости  $H_y$  [130]. Формула Киттеля (1.14) применима в случае тонких плёнок и плоских частиц, когда один из форм-факторов близок к единице, а два других – к нулю.

Преимущество этого способа расчета магнитных характеристик в том, что не нужно знать толщину плёнки, чтобы определить магнитные характеристики. Тонкие плёнки, полученные методом магнетронного напыления, могут быть неоднородны по толщине. Часто толщина определяется по времени напыления довольно неточно и может уменьшаться к краям плёнки. Однако при расчете магнитных характеристик этим способом необходимо учитывать влияние размагничивания на измерения, особенно при измерении в малых полях, когда образец не намагничен до насыщения.

Вторым способом является аппроксимация частотной зависимости магнитной проницаемости дисперсионным законом Ландау–Лифшица–Гилберта (ЛЛГ) (1.23). Этот способ позволяет найти фактор затухания Гилберта и поле, в котором образец намагничивается до насыщения. Одновременное использование двух способов, помимо нахождения намагниченности насыщения, полей анизотропии и магнитоупругости, также позволяет точнее определить толщину плёнки.

Целью данного раздела является верификация методики измерений и анализа СВЧ магнитной проницаемости в магнитном поле на тонких ФМ плёнках на гибкой подложке. Для достижения цели необходимо решить следующие задачи:

(1) найти магнитные характеристики тонких плёнок с помощью измерений СВЧ магнитной проницаемости и сравнить их со значениями, полученными методами ФМР и магнитостатическими измерениями;

(2) оценить влияние размагничивающих полей на измерения;

(3) сравнить два способа определения магнитных характеристик из частотной зависимости магнитной проницаемости: аппроксимацию зависимости резонансной частоты от внешнего поля формулой Киттеля и расчет параметров дисперсионного закона ЛЛГ;

(4) подробно исследовать переход из размагниченного в намагниченное состояние и определить физические механизмы формирования пиков магнитных потерь.

### **3.1 Измерения магнитной проницаемости тонких плёнок при приложении внешнего магнитного поля**

Образцы из тонких ФМ плёнок на гибкой подложке для коаксиальных измерений представляют собой длинные полосы, скрученные в рулон под размер коаксиальной линии, см. подраздел 2.1. При этом обычно считают, что свойства такого образца идентичны свойствам самой плёнки: частоты резонанса одинаковы, форм-фактор в направлении, перпендикулярном плоскости плёнки, равен единице, а два других – нулю, а эффективная магнитная проницаемость рулонного образца подчиняется формуле смещения Винера (1.35) [102].

Для проверки этой гипотезы исследована возможность восстановления собственной магнитной проницаемости плёнок из эффективной проницаемости образцов с помощью формулы смещения Винера. Для этой цели изготовлены два образца из одной и той же плёнки, но с различным содержанием металла. Первый образец изготовлен стандартным способом, описанным в подразделе 2.1. Вторым образцом изготовлен с добавлением при скручивании прослойки из скотча, из-за чего в нем содержится меньшее количество магнитного материала. Частотные зависимости измеренной эффективной магнитной проницаемости образцов и собственной проницаемости плёнок, восстановленные по формуле смещения Винера, показаны на рисунке 3.1. Собственную магнитную проницаемость можно считать одинаковой для двух образцов, а восстановление собственной магнитной проницаемости плёнок с помощью формулы смещения Винера корректным.

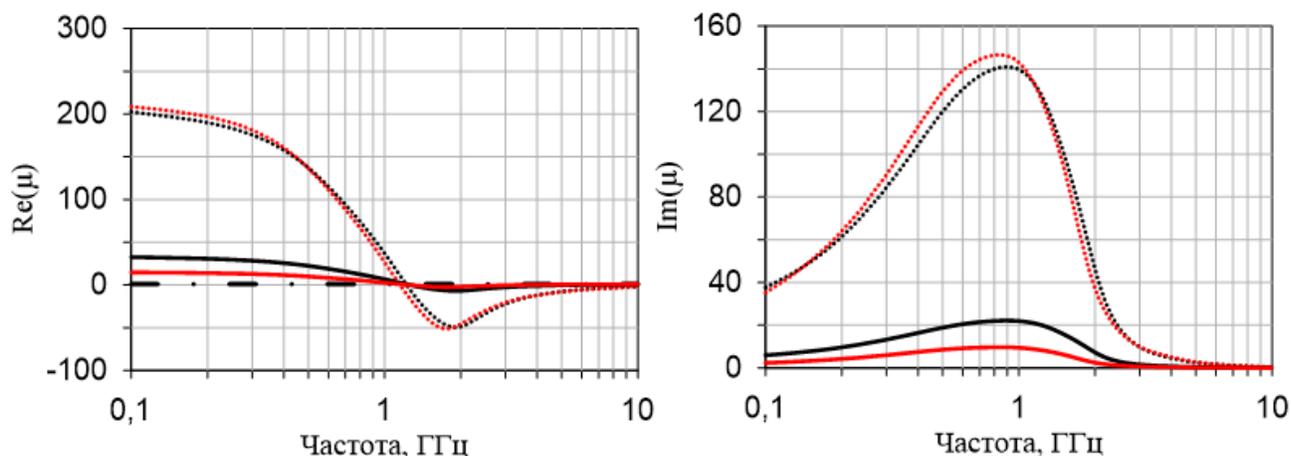


Рисунок 3.1 – Частотные зависимости измеренной эффективной магнитной проницаемости образцов (сплошные кривые) и собственной проницаемости плёнок (пунктирные кривые), восстановленные по формуле смещения Винера. Кривые черного цвета соответствуют образцам без прослойки скотча, а красного цвета – с прослойкой

Измеренные частотные зависимости собственной магнитной проницаемости образцов из плёнок супермаллоя показаны на рисунке 3.2. Проницаемость горизонтальных образцов показана серыми кривыми, проницаемость вертикальных образцов – черными. Образцы металлом наружу обозначены пунктирными линиями, металлом внутрь – сплошными. Видно, что плёнки обладают сильной магнитной анизотропией: в отсутствие внешнего магнитного поля проницаемость вертикальных образцов ( $\nu_i$  и  $\nu_o$ ) намного меньше проницаемости горизонтальных ( $h_i$  и  $h_o$ ). Следовательно, ОЛН направлена в вертикальном направлении. Кроме того, ожидается, что исследуемая плёнка суперпермаллоя будет обладать слабой магнитоупругостью [131]. Действительно, разница в магнитной проницаемости между образцами  $h_i$  и  $h_o$  мала.

Для оценки влияния постоянных размагничивающих полей исследованы коаксиальные шайбы различной толщины. На рисунке 3.3 показана измеренная частотная зависимость магнитной проницаемости для образцов  $h_i$ , которые скручены в коаксиальные шайбы разных толщин. Зависимости для шайб толщинами 3 и 5 мм обозначены пунктирной и сплошной линиями, соответственно. Значения внешнего поля указаны на графике. При внешнем поле 40 Э, кривые различны, а шайба с меньшей толщиной намагничена меньше. Образец меньшей

толщины обладает более высоким форм-фактором в направлении внешнего поля, из-за чего подвержен сильному влиянию размагничивающих полей. Однако при поле 150 Э зависимости проницаемости совпадают, что говорит о том, что размагничивание перестало влиять на измерения. Из уравнения (1.43), описывающего влияние размагничивания, следует, что магнитная проницаемость в направлении внешнего поля равна единице и плёнка намагничена до насыщения.

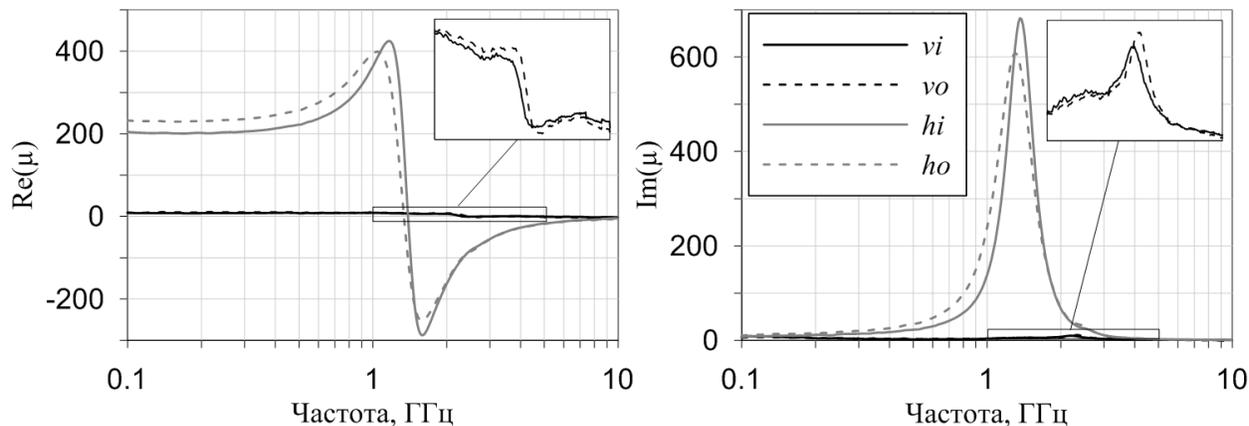


Рисунок 3.2 – Измеренные частотные зависимости собственной магнитной проницаемости образцов из плёнок. Магнитная проницаемость горизонтальных образцов показана серыми кривыми, проницаемость вертикальных образцов – черными. Зависимости образцов, скрученных металлом наружу, обозначены пунктирными линиями, металлом внутрь – сплошными

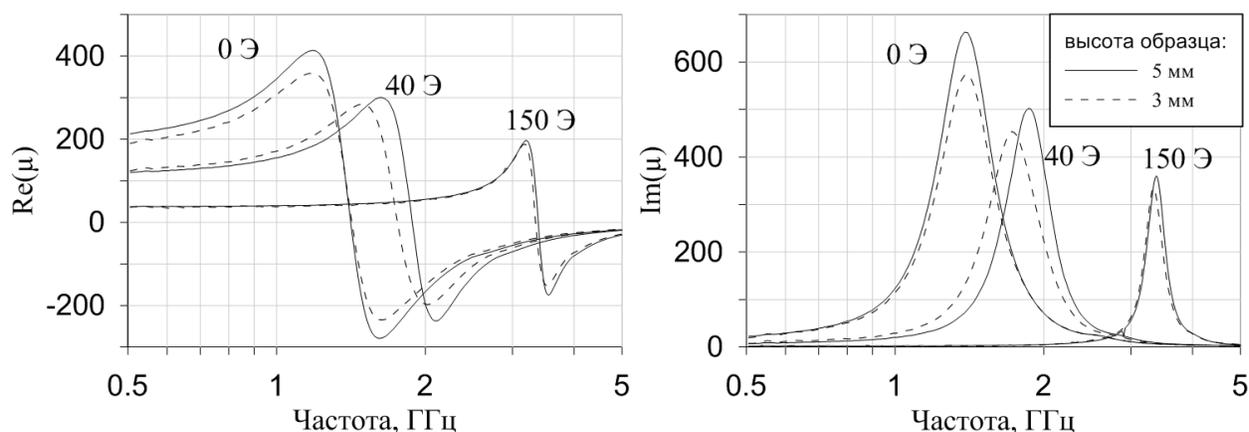


Рисунок 3.3 – Измеренные частотные зависимости собственной магнитной проницаемости образцов  $hi$  с разной толщиной во внешнем магнитном поле 0 Э, 40 Э и 150 Э. Зависимости для образцов толщиной 5 мм показаны сплошными линиями, для образцов толщиной 3 мм – пунктирными

Далее частотная зависимость магнитной проницаемости была измерена для всех четырех типов образцов при изменении внешнего постоянного магнитного

поля. Увеличение внешнего поля приводит к уменьшению амплитуды и увеличению резонансной частоты. Зависимости аппроксимированы законом дисперсии Лоренца (1.24), из которого найдены статическая магнитная проницаемость, частоты релаксации и резонанса, необходимые для определения магнитных характеристик. Анализ магнитной проницаемости с помощью аппроксимации законом Лоренца удобен, т.к. закон содержит три параметра с четким физическим смыслом: амплитуду, положение и ширину пика.

Зависимости резонансных частот от внешнего поля показаны на рисунке 3.4. Частота ФМР определена как частота, при которой действительная магнитная проницаемость пересекает единицу. Зависимость для образцов  $ho$  показана квадратами, образцы  $vo$  обозначены кружками. Резонансные частоты для образцов с различной намоткой практически одинаковы, и на рисунке показаны только зависимости для образцов, намотанных металлом наружу. Измеренные зависимости аппроксимированы формулой Киттеля (1.15), из которой найдены намагниченность насыщения и эффективное поле анизотропии  $H_a$ , которое включает в себя поле магнитокристаллической анизотропии  $H_k$  и поле магнитоупругости  $H_y$ .

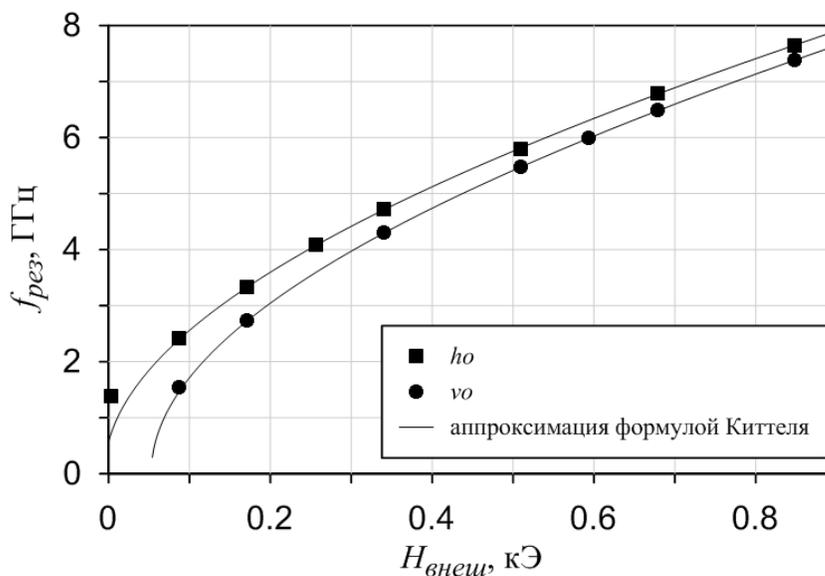


Рисунок 3.4 – Зависимость резонансной частоты от внешнего поля для образцов  $ho$  и  $vo$ . Зависимость для образцов  $ho$  показана квадратами, для образцов  $vi$  – кружками. Аппроксимация формулой Киттеля (1.15) показана черной кривой

Скручивание плёнки в коаксиальный образец создает аксиальное магнитоупругое поле для образцов, скрученных металлом внутрь ( $hi$  и  $vi$ ), и радиальное магнитоупругое поле для образцов, скрученных металлом наружу ( $ho$  и  $vo$ ). Поскольку плёнка анизотропна, можно рассмотреть два простых случая [51, 102]: (а) если  $H_y$  коллинеарно полю магнитокристаллической анизотропии  $H_k$ , то эффективное поле анизотропии  $H_a$  равно  $H_y + H_k$ , и (б) если  $H_y$  перпендикулярно  $H_k$ , то  $|H_a| = |H_y - H_k|$ , и направление легкой оси определяется знаком этой разности; при  $H_y > H_k$  образуется новая легкая ось.

Аппроксимация частотных зависимостей показана на рисунке 3.4 черными кривыми. Зависимости плохо аппроксимируются в малых полях, т.к. образец не намагничен до насыщения. Для образца  $vo$  трудно корректно определить резонансную частоту в отсутствие внешнего поля из-за слабых магнитных свойств.

Вычисленные значения эффективного поля анизотропии и намагниченности насыщения представлены в таблице 3.1. Значение намагниченности насыщения, найденное из уравнения Киттеля, близко для всех образцов, 0,7–0,72 Тл. Согласно справочным данным, намагниченность насыщения супермаллоя составляет 0,7–0,75 Тл [132]. Разница между эффективными полями анизотропии образцов с разной намоткой составляет около 5 Э, что указывает на наличие небольшого поля магнитоупругости, порядка 2–3 Э. Найденные значения полей анизотропии горизонтальных и вертикальных образцов сильно различаются: около 50 и 10 Э для вертикальных и горизонтальных образцов, соответственно. Вопрос различия полей анизотропии будет рассмотрен в подразделе 3.2.

При аппроксимации частотных зависимостей магнитной проницаемости дисперсионным законом ЛЛГ возникает значительная неопределенность в значениях параметров. В случае тонких плёнок справедливы соотношения (1.25), связывающие параметры Лоренца и ЛЛГ. Поэтому частотные зависимости проницаемости аппроксимированы дисперсионным законом Лоренца, из которого с помощью соотношений (1.25) получены параметры дисперсионного закона ЛЛГ.

**Таблица 3.1** – Найденные магнитные характеристики тонких плёнок

Образец	Формула Киттеля (формула 1.15)		Дисперсионный закон ЛЛГ (формула 1.22)		
	$H_a$ , Э	$4\pi M_0$ , Тл	$H_a$ , Э	$4\pi M_0$ , Тл	$\alpha$
<i>hi</i>	13	0,7	16	0,69	0,015
<i>ho</i>	7	0,71	10	0,7	0,015
<i>vi</i>	51	0,7	50	0,7	0,017
<i>vo</i>	55	0,72	45	0,7	0,018

Намагниченность насыщения, фактор затухания Гилберта и эффективное поле приведены в таблице 3.1. Зависимость этих параметров от внешнего поля показана на рисунке 3.5. На рисунке 3.5а представлена зависимость намагниченности от внешнего поля, на рисунке 3.5б – зависимость фактора затухания Гилберта, а на рисунке 3.5в. – зависимость общего эффективного поля  $H_{eff}$ . Черными кривыми обозначены зависимости для вертикальных образцов, серыми – для горизонтальных. Зависимости образцов *hi* и *vi* показаны сплошными линиями, *ho* и *vo* – пунктирными.

Видно, что намагниченность и фактор затухания выходят на насыщение в области 100 – 200 Э. Намагниченность насыщения совпадает с найденной из уравнения Киттеля для всех типов образцов и составляет 0,69–0,7 Тл. Коэффициент затухания Гилберта для вертикальных и горизонтальных образцов немного отличается: 0,015 для горизонтальных образцов и 0,018 для вертикальных. В [133] было показано, что фактор затухания Гилберта может быть анизотропным в эпитаксиальных плёнках железа. Разница также может быть связана с погрешностью измерений. Разница между коэффициентами затухания образцов с различной намоткой несущественна.

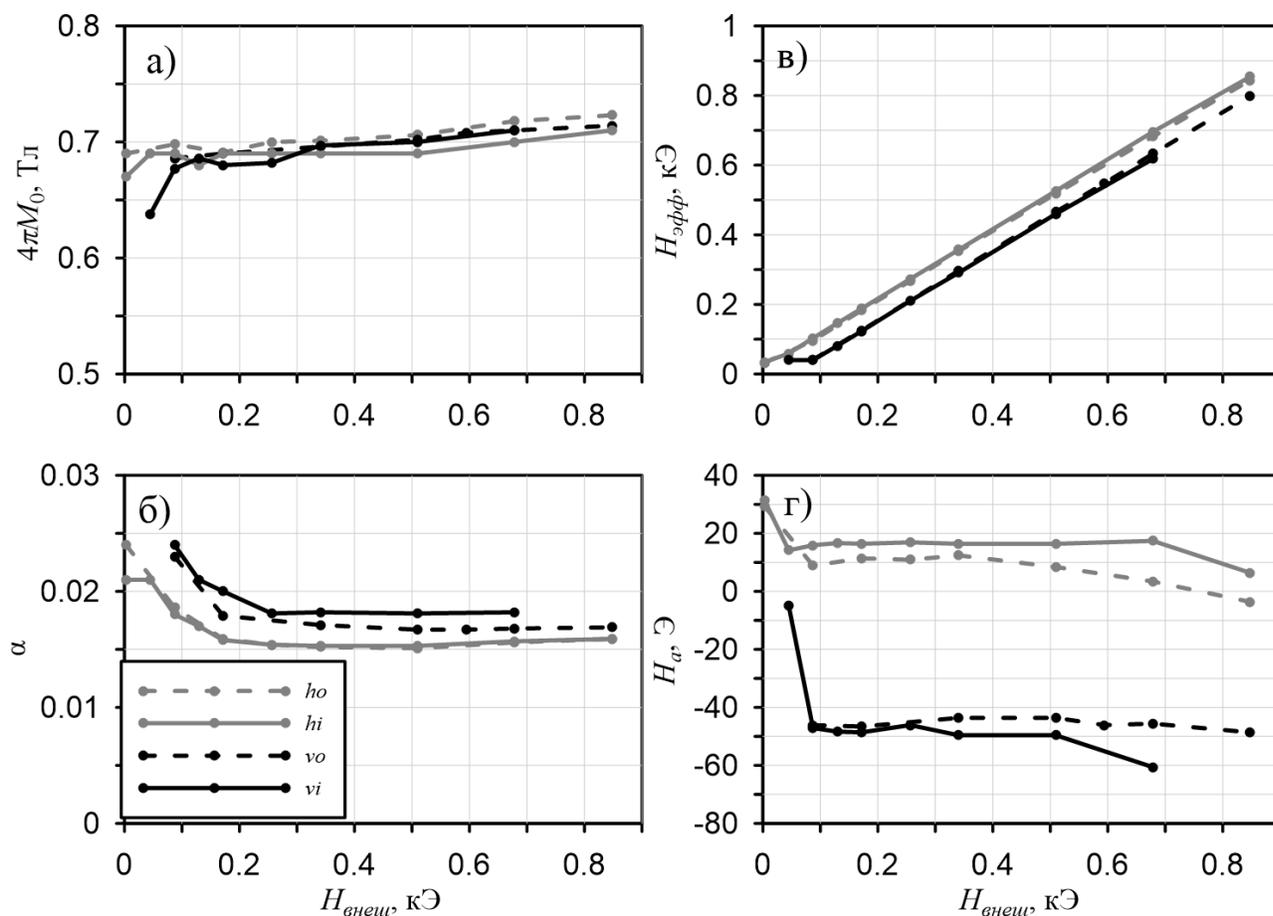


Рисунок 3.5 – Зависимость параметров дисперсионного закона ЛЛГ от внешнего поля: а) намагниченность насыщения; б) фактор затухания; в) эффективное поле; г) поле анизотропии

На рисунке 3.5г показана зависимость эффективного поля анизотропии  $H_a$  от внешнего поля. При намагничивании до состояния насыщения эффективное поле анизотропии не зависит от внешнего поля и совпадает со значениями, полученными из уравнения Киттеля (таблица 3.1). Отклонение поля от константы в больших внешних полях может быть связано с неточностями аппроксимации законом Лоренца. При больших значениях внешнего поля зависимость имеет малую амплитуду и высокую частоту релаксации.

Магнитостатические измерения с помощью вибрационного магнитометра также позволяют найти значения намагниченности насыщения и поле анизотропии. Такие измерения сильно зависят от точности определения толщины плёнки и размеров измеряемого образца. Толщина тонкой плёнки может уменьшаться к её

краям и иметь неоднородности, а погрешность определения площади измеряемого образца может быть высока из-за его малых размеров.

На рисунке 3.6 представлены зависимости магнитного момента измеряемого образца от приложенного внешнего поля. Черная кривая соответствует измерениям вдоль ОЛН, синяя – вдоль трудной оси. Намагниченность насыщения исследуемого образца составила 0,74 Тл. Дополнительно проведено измерение кривых намагничивания образца, вырезанного с края плёнки. При этом считалось, что образцы имеют одинаковую толщину 160 нм. Намагниченность насыщения такого образца оказалась меньше и составила 0,6 Тл. Это говорит о том, что толщина к краям плёнки действительно уменьшается.

Поле анизотропии плёнки может быть найдено из второй производной функции зависимости магнитного момента образца от приложенного поля при намагничивании вдоль трудной оси [4, 134]:

$$P(H_k) = -H \frac{d^2(M / M_0)}{dH^2}. \quad (3.1)$$

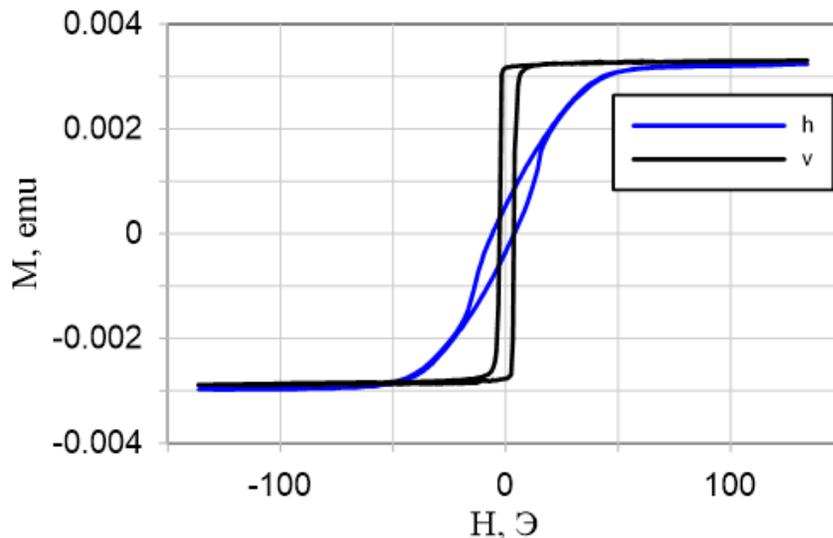


Рисунок 3.6 – Измерения магнитного момента тонкой плёнки супермаллоя. Черная кривая соответствует измерениям при намагничивании вдоль легкой оси, синяя – при намагничивании вдоль трудной оси.

Зависимость распределения поля анизотропии, полученная с помощью (3.1) из измеренных кривых намагничивания образца, которые показаны на рисунке 3.6, представлена на рисунке 3.7. Значение поля анизотропии соответствует максимуму на кривых распределения. Среднее значение поля анизотропии составляет порядка 40 – 50 Э, что сопоставимо со значениями, найденными из СВЧ измерений магнитной проницаемости.

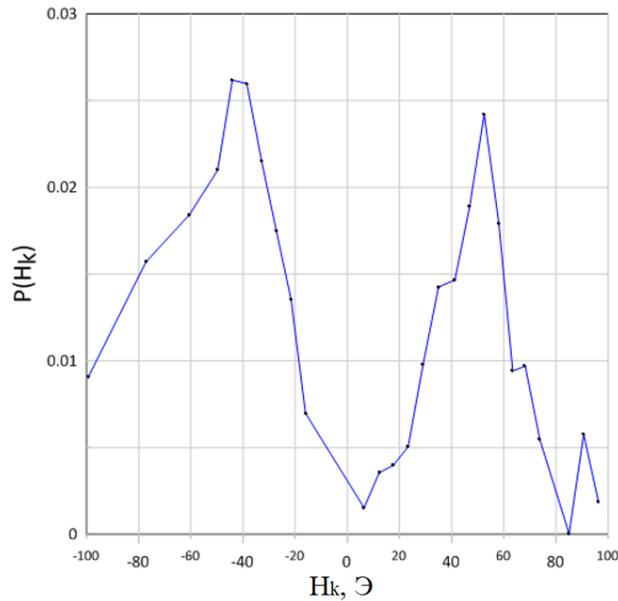


Рисунок 3.7 – Распределение полей анизотропии в тонкой плёнке супермаллоя, найденное по (3.1) из измеренных кривых намагничивания, показанных на рисунке 3.5

Для проверки корректности используемой методики проведены измерения исследуемой плёнки супермаллоя методом ФМР. Измерения проведены при намагничивании образца под разными углами в плоскости плёнки на частоте 9,15 ГГц. Измеренные зависимости резонансного поля  $H_r$  и ширины линии поглощения  $\Delta H$  показаны на рисунке 3.8. Из измеренных зависимостей с помощью теории Киттеля (1.15) найдены магнитные характеристики плёнки: намагниченность насыщения,  $4\pi M_0 = 0,7$  Тл, поле магнитокристаллической анизотропии,  $H_k = 18$  Э, и фактор затухания Гилберта,  $\alpha \approx 0,016$ . Найденные значения характеристик совпадают со значениями, найденными с помощью измерений СВЧ магнитной

проницаемости, что подтверждает корректность используемой методики измерений.

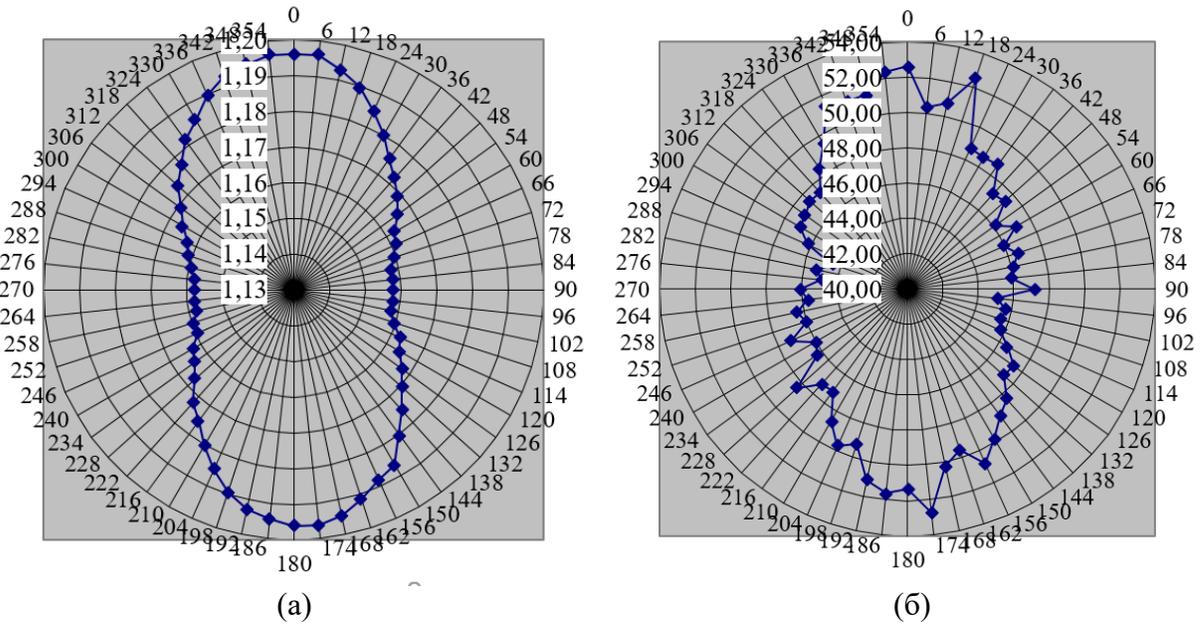


Рисунок 3.8 – Измерения методом ФМР: (а) Угловая зависимость резонансного поля ( $H_r$ , кЭ), (б) Угловая зависимость ширины линии поглощения ( $\Delta H$ , Э)

Дополнительным методом исследования СВЧ магнитных свойств тонких ФМ плёнок может быть расчёт параметра Аше  $k_A$ . При намагничивании до насыщения и измерении магнитной проницаемости в направлении, перпендикулярном внешнему магнитному полю, параметр Аше стремится к единице. Обычно параметр Аше оценивают по формуле (1.20), считая при этом, что намагниченность насыщения много больше поля анизотропии.

Однако супермаллой обладает малыми значениями намагниченности насыщения, сравнимыми со значениями внешнего магнитного поля, используемого в проводимых исследованиях. Поэтому расчёт параметра Аше проведён с учётом зависимости от внешнего магнитного поля:

$$k_A = \frac{(\mu_{cm} - 1) f_{рез}^2}{(\gamma 4\pi M_0)^2 (1 + 2H_{эфф} / 4\pi M_0)}. \quad (3.2)$$

Зависимость параметра Аше от внешнего магнитного поля для всех четырёх типов образцов представлена на рисунке 3.9. Значение намагниченности насыщения было выбрано одинаковым для всех типов образцов и равным 0,7 Тл.

Видно, что параметр Аше выходит на насыщение у всех типов образцов и примерно равен единице.

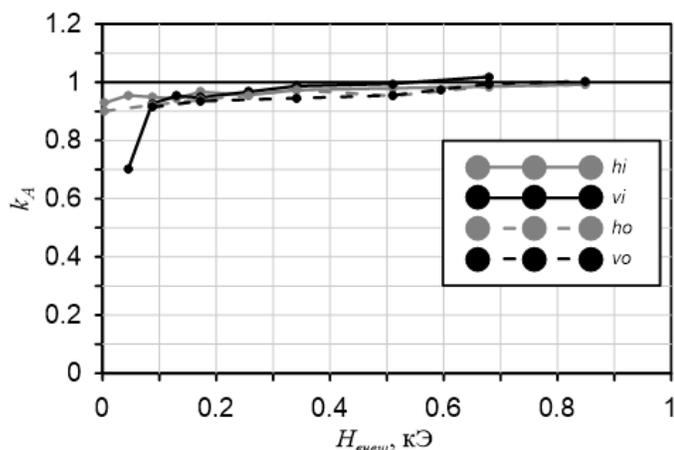


Рисунок 3.9 – Зависимость параметра Аше от внешнего магнитного поля. Тип образца указан в легенде

Таким образом, измерения частотной зависимости магнитной проницаемости во внешнем поле позволяют найти значения полей анизотропии и намагниченности насыщения тонких ФМ плёнок. Показаны два способа нахождения магнитных характеристик из имеющихся данных: (1) аппроксимация зависимости частоты резонанса от внешнего поля формулой Киттеля и (2) аппроксимация частотной зависимости магнитной проницаемости дисперсионным законом Ландау-Лифшица-Гилберта. Значения, найденные двумя способами, совпадают. Определение намагниченности насыщения магнитостатическими методами может быть затруднено в связи с неоднородностью плёнки по толщине и большой погрешностью определения площади образца. Однако значения полей анизотропии и намагниченности насыщения, найденные из СВЧ измерений магнитной проницаемости, близки к найденным из измерений вибрационным магнитометром и методом ФМР.

Найденные из СВЧ измерений значения полей анизотропии оказались различны для образцов, вырезанных в двух взаимно перпендикулярных направлениях. Однако поле анизотропии – характеристика материала и не должна

зависеть от направления. Поискам причин этого различия посвящен следующий подраздел.

### **3.2 Исследование влияния переменных размагничивающих полей на результат измерений во внешнем постоянном магнитном поле**

Возможными причинами различия полей анизотропии между образцами, вырезанными в двух взаимно перпендикулярных направлениях, могут быть влияние постоянных или переменных размагничивающих полей, отклонения гиромагнитного отношения от справочных значений, неточность аппроксимации частотной зависимости магнитной проницаемости дисперсионным законом Лоренца, погрешность в определении внешнего постоянного магнитного поля и наличие поля, связанного с магнитоупругим эффектом.

Для проверки влияния этих факторов значения внешнего постоянного магнитного поля и гиромагнитного отношения в расчётах изменяли в широких пределах. Поля анизотропии у плёнок, вырезанных во взаимно перпендикулярных направлениях, окажутся равными, если значения внешнего постоянного магнитного поля отличаются от измеренных более чем в 2 раза, при этом значения гиромагнитного отношения должны быть в 2 раза меньше теоретических. Однако погрешность измерения внешнего магнитного поля составляет не более 5%. Следовательно, различие в полях анизотропии не может быть связано с этими причинами.

При аппроксимации частотной зависимости магнитной проницаемости дисперсионным законом Лоренца неточность может возникнуть в определении значения частоты релаксации, которая не влияет на расчет полей анизотропии. Постоянные размагничивающие поля влияют на результат СВЧ измерений магнитной проницаемости лишь в малых полях, когда плёнка не намагничена до насыщения. В нашем случае зависимость частоты резонанса от внешнего поля была аппроксимирована формулой Киттеля при значениях внешнего поля, больших поля

насыщения. Поле магнитоупругости плёнок также очень мало, порядка 3 Э, и не может привести к такой большой разнице полей анизотропии.

Для поиска причины различия найденных значений полей анизотропии были изготовлены образцы, вырезанные в двух взаимно перпендикулярных направлениях и обладающие различной длиной намотки – длиной полосы, из которой был скручен рулонный образец. Образцы с меньшей длиной намотки имеют меньшую концентрацию металла в образце и большее расстояние между слоями рулонного образца.

На рисунке 3.10 представлена частотная зависимость магнитной проницаемости для образцов, вырезанных в горизонтальном направлении и имеющих различную длину намотки. Частотная зависимость магнитной проницаемости для образцов с различной длиной намотки соответствует кривым разных цветов. Видно, что чем больше длина намотки, тем больше статическая магнитная проницаемость и величина магнитных потерь. При наличии внешнего поля частота максимума магнитных потерь больше для образца с меньшей длиной намотки.

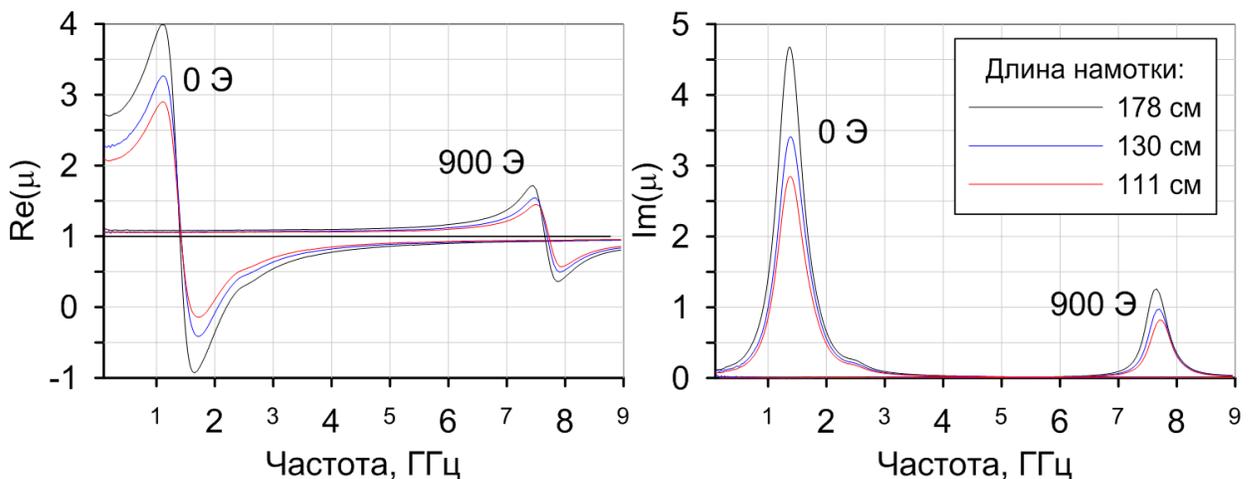


Рисунок 3.10 – Частотная зависимость комплексной магнитной проницаемости при уменьшении длины намотки и различном внешнем магнитном поле. Значение длины намотки указано в легенде. Значения внешнего поля указаны на рисунке.

Частотные зависимости магнитной проницаемости аппроксимированы дисперсионным законом Лоренца для различных длин намотки и значений

внешнего магнитного поля, откуда найдены частоты резонанса. Далее полученные зависимости частот резонанса от внешнего магнитного поля аппроксимированы формулой Киттеля (1.15), откуда найдены намагниченность насыщения и поля анизотропии для образцов с разной длиной намотки. Найденные значения намагниченности насыщения не зависят ни от длины намотки, ни от направления, в котором вырезаны образцы, и равны 0,7 – 0,72 Тл, что совпадает с результатами, полученными в предыдущем подразделе. Зависимость найденных полей анизотропии от длины намотки представлена на рисунке 3.11. Серым точкам соответствует зависимость для вертикальных образцов, черным – для горизонтальных. Видно, что при уменьшении длины намотки и, соответственно, увеличении расстояния между слоями рулонного образца, найденные значения полей анизотропии сближаются.

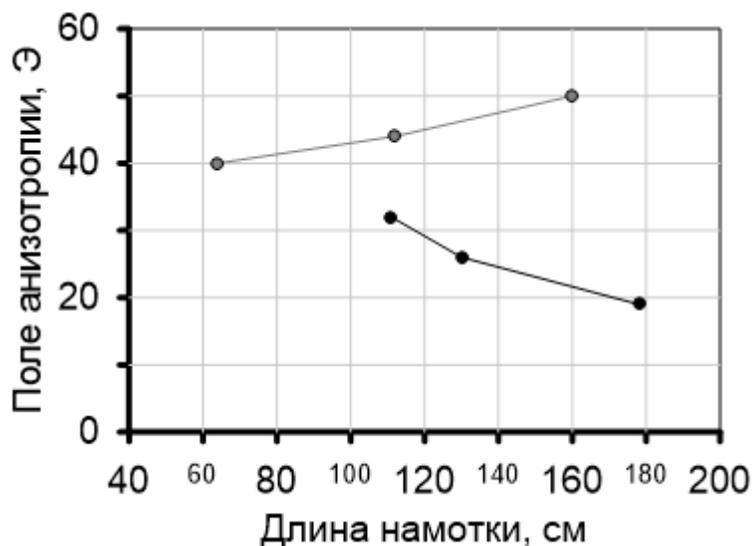


Рисунок 3.11 – Зависимость найденных полей анизотропии от длины намотки образца. Образцы вырезаны в двух взаимно перпендикулярных направлениях. Серым точкам соответствует зависимость для вертикальных образцов, черным – для горизонтальных

Дополнительно были проведены измерения рулонных образцов меньшей толщины, вырезанных в перпендикулярных направлениях. Тем же образом, как и в случае с образцами с меньшей длиной намотки, были найдены поля анизотропии и намагниченность насыщения, см. рисунок 3.12. Видно, что поля анизотропии у образцов, вырезанных в перпендикулярных направлениях, расходятся при

уменьшении толщины образца. Найденные значения намагниченности насыщения не зависят от толщины образца.

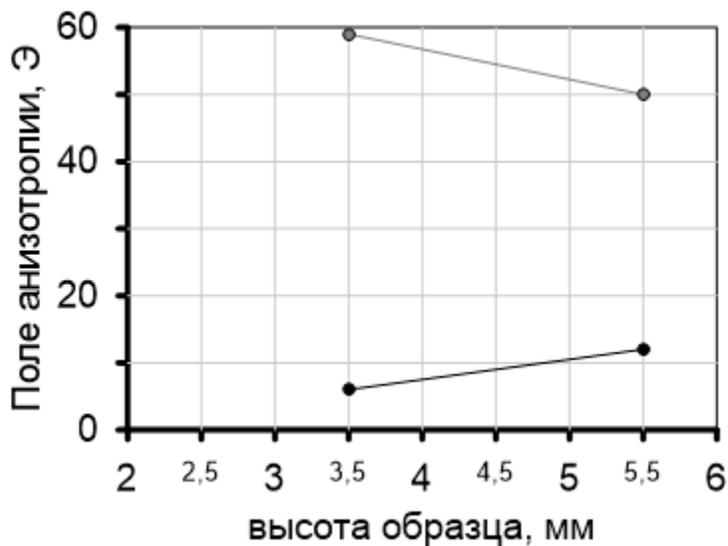


Рисунок 3.12 – Зависимость найденных значений поля анизотропии от толщины образца. Образцы вырезаны в двух взаимно перпендикулярных направлениях. Серым точкам соответствует зависимость для вертикальных образцов, черным – для горизонтальных

Проведенные эксперименты указывают на то, что на определение полей анизотропии влияют размагничивающие поля. Формула Киттеля в виде (1.15) справедлива, когда образец представляет собой бесконечную плоскость. Если переменное магнитное поле направлено по окружности, как в случае коаксиальной измерительной линии, образец должен представлять бесконечно длинное и бесконечно тонкое кольцо. В исследуемом случае образец нельзя считать бесконечно тонким, несмотря на то, что расстояние между слоями много больше толщины слоёв рулонного образца. И поля анизотропии образцов, вырезанных в перпендикулярных направлениях, при приближении формы образца к идеальному случаю сближаются. При измерении рулонных образцов стандартной формы истинное значение поля анизотропии можно приблизительно рассчитать как среднее арифметическое между двумя значениями полей перпендикулярных образцов.

При расчете намагниченности насыщения и поля анизотропии из дисперсионного закона ЛЛГ получаются одинаковые значения полей анизотропии

у перпендикулярных образцов, если считать форм-фактор образца в направлении коаксиальной оси не нулевым, а равным:  $N_z=10^{-3}$ . При этом найденное поле анизотропии составило порядка 35 Э. Поле анизотропии, найденное из магнитостатических измерений, составляет порядка 40–50 Э.

Таким образом, на величины найденных полей анизотропии влияют переменные размагничивающие поля. Уменьшение длины катушки, 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 намагнитченности насыщения одинаковы для всех образцов. Расчёт параметров дисперсионного закона ЛЛГ при значениях форм-факторов, отличных от нуля и единицы,  $N_x=0$ ,  $N_y=1-10^{-3}$ ,  $N_z=10^{-3}$  даёт одинаковые значения полей анизотропии в двух направлениях, порядка 35 Э.

### **3.3 Анализ магнитной структуры тонких ферромагнитных плёнок при приложении внешнего магнитного поля**

Возможность менять внешнее магнитное поле позволяет определить физические механизмы, ответственные за возникновение различных пиков магнитных потерь, подробнее изучить переход из размагниченного в намагнитченное состояние и связать магнитные характеристики в размагниченном и намагнитченном состоянии.

Верификация методики определения физических механизмов, ответственных за возникновение различных пиков магнитных потерь, осуществлена на тонких плёнках супермаллоя на гибкой подложке. Плёнки намагнитчиваются до насыщения в существенно меньших полях, по сравнению с композитами, и частотная зависимость магнитной проницаемости плёнок имеет более простую форму, в то время как магнитная проницаемость композитов зависит от концентрации магнитного наполнителя, размеров и формы частиц.

Измеренная частотная зависимость комплексной магнитной проницаемости тонкой плёнки супермаллоя при различных значениях внешнего магнитного поля показана на рисунке 3.13. В отсутствие внешнего магнитного поля плёнка, вырезанная в вертикальном направлении, почти не имеет магнитных свойств. При увеличении внешнего магнитного поля до 60 Э величина магнитных потерь увеличивается, а частота максимума уменьшается. При этом, в полях (10 – 40) Э видно, что пик потерь имеет нелоренцеву форму и ассиметричен.

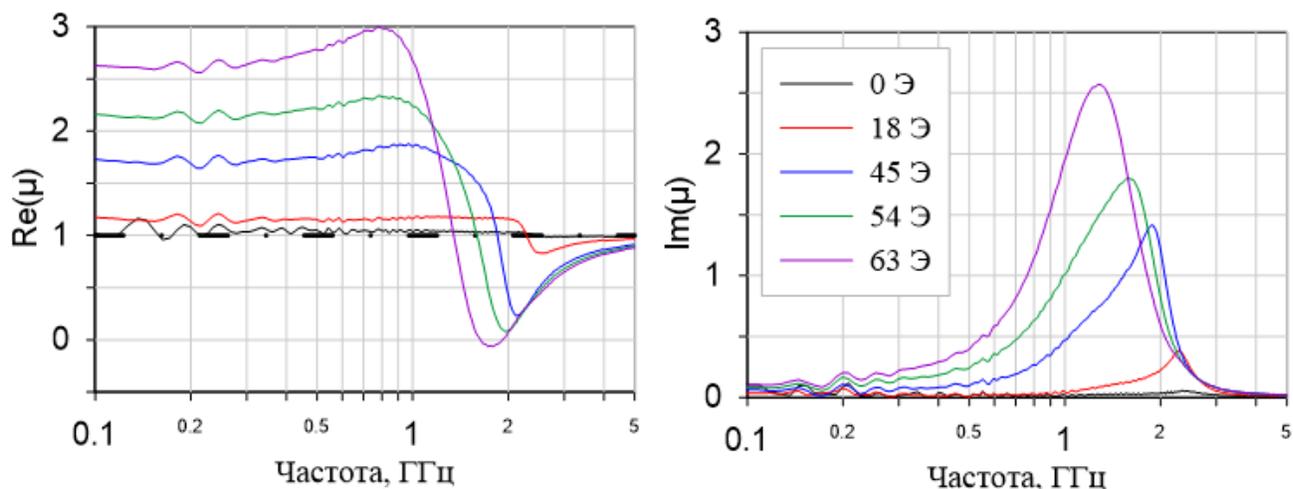


Рисунок 3.13 – Частотная зависимость комплексной магнитной проницаемости тонкой плёнки супермаллоя при приложении малого внешнего магнитного поля. Значения внешнего поля указаны на графике.

Измеренная частотная зависимость магнитной проницаемости при приложении поля напряженностью 30 Э показана на рисунке 3.14 черной кривой. Видно, что помимо пика магнитных потерь, связанного с ФМР, присутствуют дополнительные магнитные потери на частотах менее 2 ГГц. Измеренная частотная зависимость может быть с большой точностью аппроксимирована двумя резонансами Лоренца.

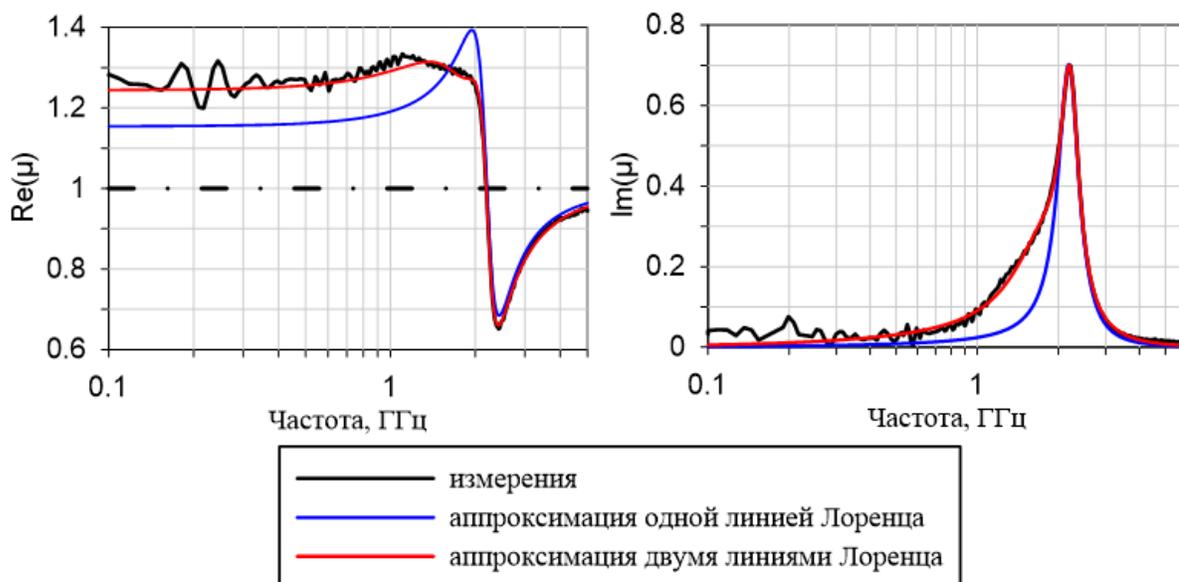


Рисунок 3.14 – Частотная зависимость комплексной магнитной проницаемости тонкой плёнки супермаллоя при приложении внешнего магнитного поля 30 Э. Черным цветом обозначена измеренная зависимость магнитной проницаемости, синим – аппроксимация частотной зависимости линией Лоренца, красным – аппроксимация двумя линиями Лоренца

Зависимость параметров дисперсионного закона Лоренца и параметра Аше от внешнего магнитного поля до 70 Э показана на рисунке 3.15. Черные кривые соответствуют пику, связанному с ФМР, серые связаны с низкочастотным пиком магнитных потерь. В поле порядка 70 Э суммарный параметр Аше приближается к единице и становится постоянным, что говорит о том, что плёнка намагничивается до насыщения. Амплитуды обоих резонансов примерно одинаковы и увеличиваются с увеличением внешнего магнитного поля. Частоты резонанса близки и при увеличении внешнего поля уменьшаются. Частота релаксации второго резонанса меньше частоты релаксации второго пика, связанного с ФМР. В поле порядка 60 Э пики сливаются в один, и их становится трудно различить.

Подобное поведение пиков магнитных потерь во внешнем поле может быть объяснено следующим образом. В отсутствие внешнего магнитного поля большинство магнитных моментов повернуты вдоль легкой оси намагничивания, которая совпадает с направлением измерения СВЧ магнитной проницаемости, поэтому не дают вклад в магнитную проницаемость. При увеличении внешнего магнитного поля магнитные моменты поворачиваются в направлении внешнего

поля и начинают прецессировать в переменном магнитном поле, тем самым увеличивая амплитуду пика потерь, связанного с ФМР. Из-за перпендикулярности поля анизотропии и внешнего магнитного поля частота резонанса уменьшается. Одновременно с доворотом вектора намагниченности плёнки происходит исчезновение доменной структуры. Низкочастотный резонанс может быть связан с расщеплением ФМР на доменной структуре – доменными модами. Наличие доменной структуры также подтверждается наличием гистерезиса на данных магнитостатических измерений.

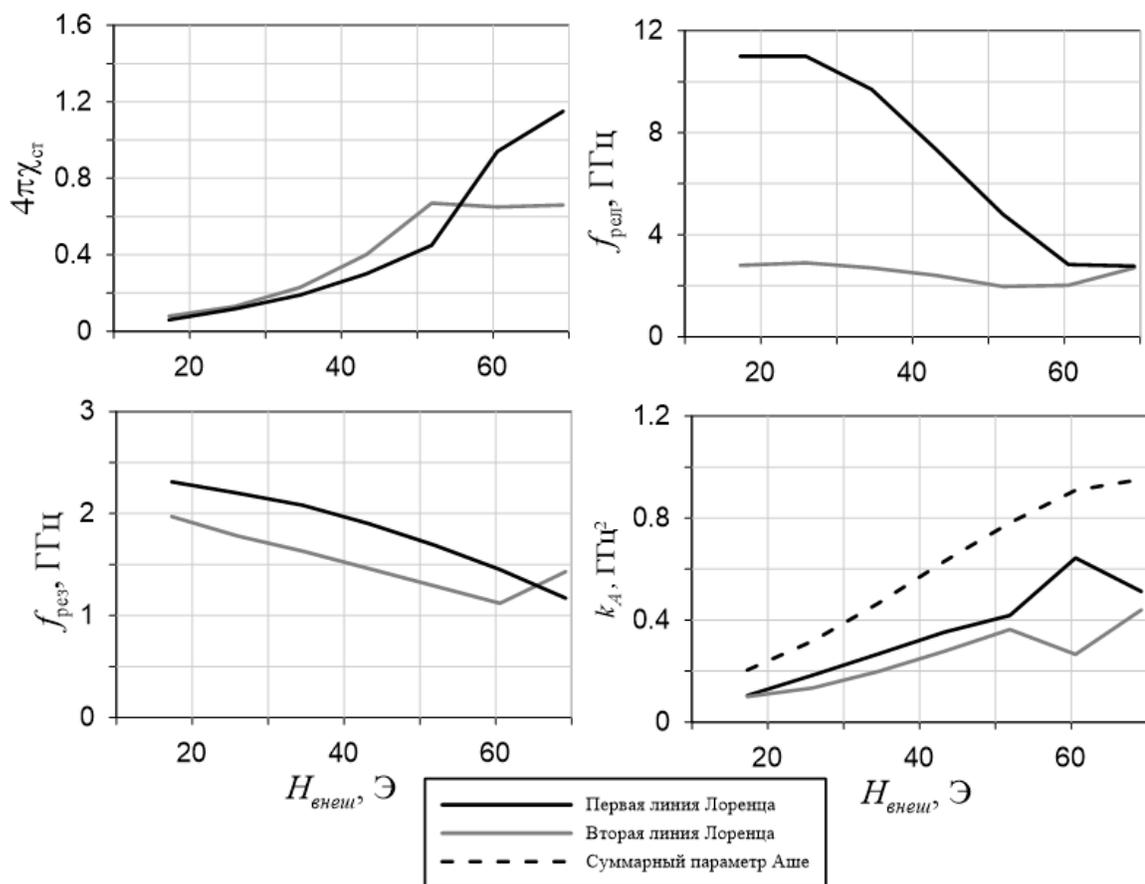


Рисунок 3.15 – Зависимость параметров дисперсионного закона Лоренца при аппроксимации частотной зависимости магнитной проницаемости двумя резонансами Лоренца в малых полях

Судя по магнитостатическим данным, гистерезис исчезает в полях порядка 30 Э, в то время как низкочастотный резонанс наблюдается вплоть до полей 60 Э. Эта разница может быть связана с размагничивающими полями, т.к. форма образцов

при измерениях магнитной проницаемости и магнитостатических измерениях различна.

Таким образом, СВЧ магнитные потери плёнок в магнитном поле определяются ФМР. Поведение пиков магнитных потерь во внешнем поле полностью соответствует теории ФМР. При нулевом внешнем поле СВЧ магнитная проницаемость в направлении ОЛН единична. При намагничивании векторы магнитного момента поворачиваются вдоль поля. Магнитная проницаемость описывается законом ЛЛГ с хорошей точностью, зависимость частоты резонанса от внешнего поля подчиняется формуле Киттеля, параметр Аше при намагничивании до насыщения равен единице. Найденные из этих уравнений магнитные характеристики материала соответствуют справочным данным и данным магнитостатических измерений и измерений методом ФМР.

### **3.4 Учёт влияния постоянных размагничивающих полей на измерения**

Исследование влияния постоянных размагничивающих полей на результат измерений проведено на образцах из *Fe-N* плёнки. Коаксиальные образцы разной толщины намагничиваются неодинаково во внешнем поле, если плёнка не намагничена до насыщения. Измеренная действительная магнитная проницаемость коаксиального образца из *Fe-N* плёнки показана на рисунке 3.16. Черные линии соответствуют проницаемости образца толщиной 5,4 мм, а серые – 2,5 мм. Величина внешнего магнитного поля указана в легенде. Образцы намотаны металлом внутрь. При увеличении внешнего магнитного поля статическая магнитная проницаемость уменьшается, а резонансная частота увеличивается.

Разница в магнитной проницаемости между образцами с разной толщиной достигает максимума в поле 190 Э. Дальнейшее увеличение внешнего поля приводит к уменьшению различия из-за уменьшения статической магнитной проницаемости и приближения плёнки к насыщению.

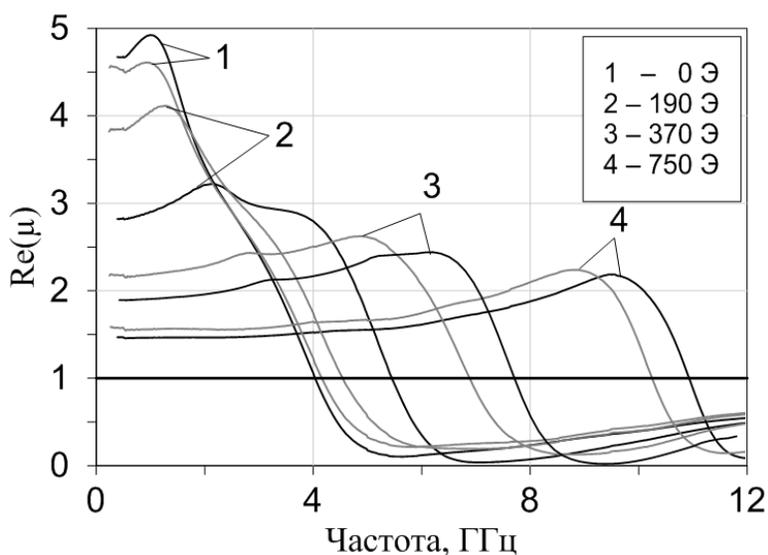


Рисунок 3.16 – Измеренная частотная зависимость действительной магнитной проницаемости коаксиальных образцов из Fe-N плёнки, намотанных металлом внутрь, во внешнем поле. Значения внешнего поля указаны в легенде. Черные линии соответствуют проницаемости образца толщиной 5,4 мм, а серые – 2,5 мм.

Внутри частиц неэллипсоидальной формы магнитное поле неоднородно, что может исказить результаты измерений. Однако в магнитном поле частотная зависимость магнитной проницаемости имеет лоренцев вид, и искажения незначительны. Проблема размагничивания коаксиальной шайбы была решена в применении к задаче создания электромагнитной пушки. Учёт размагничивания может быть проведён с помощью расчёта эффективных форм-факторов коаксиальных образцов по формуле (1.3), взятой из публикаций [41, 42]. Зависимость частоты ФМР от внешнего поля показана на рисунке 3.17. Треугольникам соответствует зависимость частоты ФМР от внешнего поля с учётом размагничивания по формуле (1.43), кружкам – без учёта размагничивания. Форм-факторы образцов в направлении коаксиальной оси рассчитаны с использованием формулы (1.3). Форм-фактор образца  $N$  с внешним диаметром 7 мм, внутренним диаметром 3 мм и толщиной 2,5 мм составляет порядка 0,6. Образец толщиной 5,4 мм имеет форм-фактор  $N$  0,35. Зависимости образцов разной толщины при учёте размагничивания ложатся на одну кривую, которая может быть аппроксимирована формулой Киттеля (1.15).

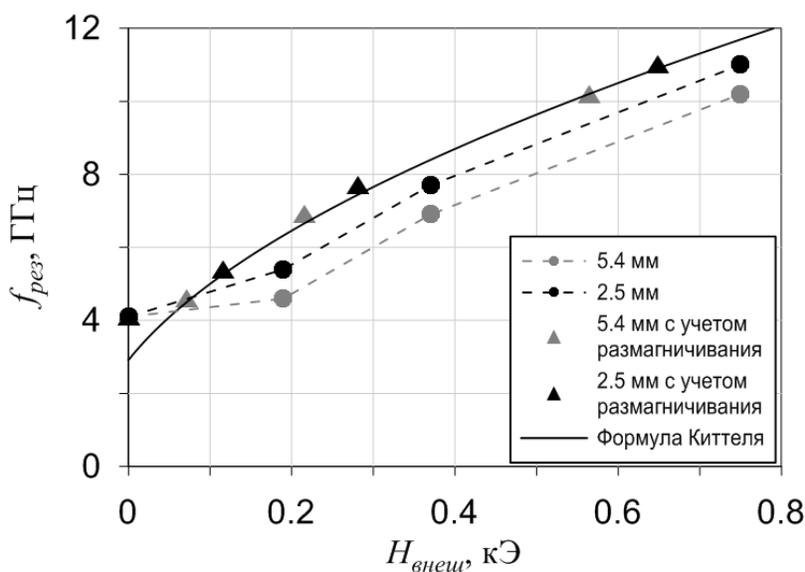


Рисунок 3.17 – Зависимость частоты ФМР от внешнего поля с учётом размагничивания и без. Серым цветом обозначены зависимости для образцов толщиной 5,4 мм, черным цветом – для образцов толщиной 2,5 мм. Треугольникам соответствует зависимость частоты ФМР от внешнего поля с учётом размагничивания по формуле (1.43), кружкам – без учёта размагничивания. Аппроксимация формулой Киттеля (1.15) показана сплошной черной кривой

Аппроксимация полученных данных формулой Киттеля (1.15) позволяет найти намагниченность насыщения и поле анизотропии. При учете влияния размагничивающих постоянных полей поле анизотропии составляет  $H_k = 57$  Э, а намагниченность насыщения  $4\pi M_0 = 1,9$  Тл. По справочным данным намагниченность насыщения железа составляет 2,1 Тл. Разница может быть связана с добавлением азота.

Без учёта влияния размагничивания зависимости частоты резонанса от внешнего поля различны для образцов разной толщины: значения намагниченности насыщения и поля анизотропии для образца толщиной 5,4 мм составили 1,8 Тл и 41 Э, соответственно, и 1,86 Тл и 12 Э для образца толщиной 2,5 мм.

Однако если образец намотан металлом наружу, частота ФМР не зависит от толщины образца. Измеренная действительная магнитная проницаемость таких образцов показана на рисунке 3.18. Причиной такого поведения может быть сильная анизотропия плёнки. В образцах, намотанных металлом наружу, плёнка растянута, что приводит к возникновению радиального поля магнитоупругости и сильной анизотропии образца. В этом случае магнитные моменты направлены вдоль оси коаксиальной ячейки, т.е. направления внешнего магнитного поля, и магнитная проницаемость в этом направлении равна единице. Следовательно,

эффективное поле внутри образца (1.43) равно внешнему полю и не зависит от толщины образца.

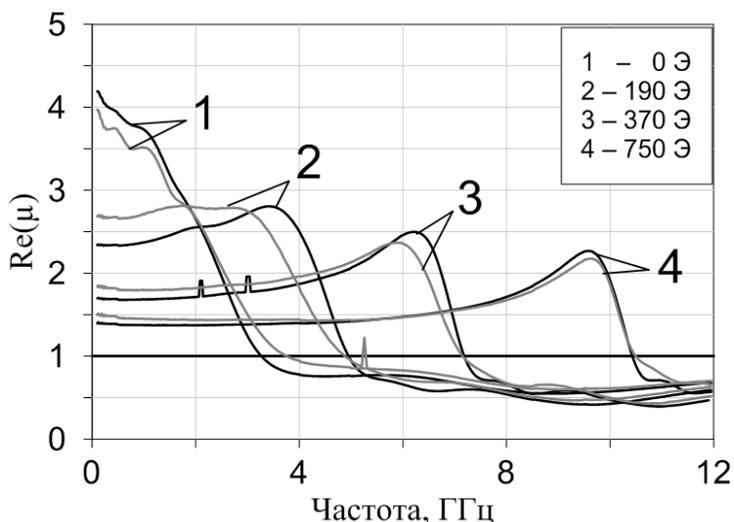


Рисунок 3.18 – Измеренная частотная зависимость действительной магнитной проницаемости коаксиальных образцов из Fe-N плёнки, намотанных металлом наружу, во внешнем поле; значения внешнего поля указаны на рисунке

Сделанный вывод полностью подтверждается измерениями плёнки, вырезанной в перпендикулярном направлении. Частотная зависимость действительной магнитной проницаемости образца, сделанного из Fe-N плёнки, вырезанной в перпендикулярном направлении и скрученной металлом наружу, показана на рисунке 3.19. Действительно, в отсутствие внешнего поля магнитная проницаемость равна единице и размагничивание не влияет на результат измерений при приложении внешнего поля в данном направлении.

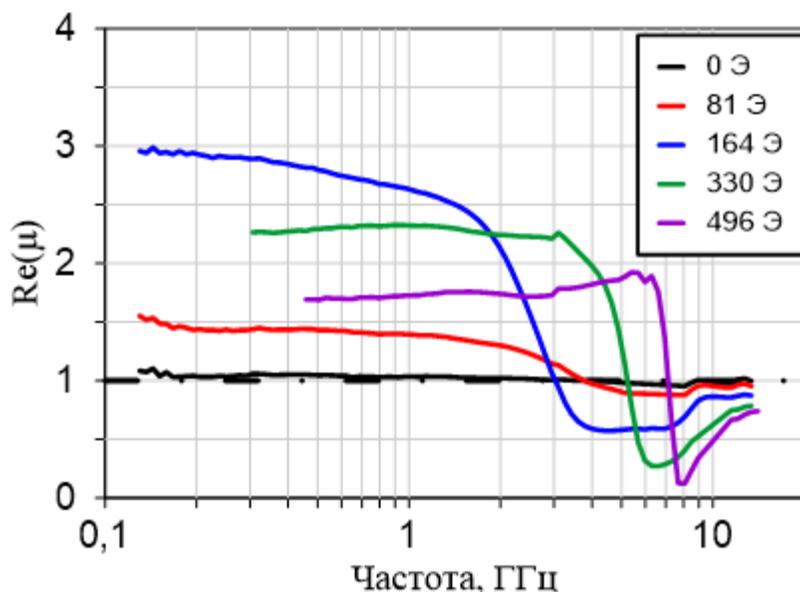


Рисунок 3.19 – Измеренная частотная зависимость действительной магнитной проницаемости коаксиальных образцов из Fe-N плёнки, намотанных металлом наружу, во внешнем поле. Плёнка вырезана в вертикальном направлении. Значения внешнего магнитного поля указаны в легенде

Таким образом, при определении магнитных характеристик образцов с большим полем насыщения необходимо учитывать влияние размагничивающих полей. Магнитные характеристики образцов разной толщины, найденные без учёта влияния размагничивания, различаются. Учёт влияния размагничивания может быть проведён с помощью расчёта эффективного форм-фактора измеряемых коаксиальных образцов. Это позволило проводить количественный анализ измеренной магнитной проницаемости. Учёт размагничивания необходим при исследовании СВЧ магнитных свойств композитных материалов, т.к. композиты намагничиваются до насыщения в существенно более высоких полях, чем тонкие ФМ плёнки.

### **3.5 Выводы к разделу 3**

Методика измерений и анализа СВЧ магнитной проницаемости в магнитном поле верифицирована на тонких ферромагнитных плёнках на гибкой подложке. Измерения проведены с помощью метода НРУ, модифицированного для измерений в зависимости от внешнего магнитного поля. Анализ данных проведен с помощью аппроксимации измеренных данных дисперсионными законами Лоренца, Ландау-Лифшица-Гилберта и формулой Киттеля. Учёт влияния размагничивания с помощью расчёта форм-факторов коаксиальных образцов позволяет проводить количественный анализ измеряемых данных.

С помощью разработанной методики найдены намагниченность насыщения, поле анизотропии и поле магнитоупругости исследуемых плёнок. Найденные значения магнитных характеристик совпадают со справочными данными и значениями, найденными из измерений методом ФМР и магнитостатических измерений. Показано, что два способа определения магнитных характеристик, а именно с помощью формулы Киттеля и с помощью дисперсионного закона Ландау-Лифшица-Гилберта, дают одинаковые результаты.

Исследовано влияние размагничивающих полей на измерения. Учёт влияния постоянных размагничивающих полей с помощью расчёта форм-фактора коаксиальных образцов позволяет находить магнитные характеристики тонких плёнок при значениях внешнего поля, недостаточных для намагничивания плёнки до насыщения. Показано, что переменные размагничивающие поля влияют на величину найденного поля анизотропии тонких ФМ плёнок и приводят к расхождению значений полей анизотропии у плёнок, вырезанных в двух взаимно перпендикулярных направлениях. Уменьшение количества витков и увеличение толщины рулонного образца приводит к уменьшению этого расхождения.

Определены физические механизмы, приводящие к появлению наблюдаемых пиков магнитных потерь. Показано, что СВЧ магнитные потери плёнок в магнитном поле определяются ФМР. Поведение пиков магнитных потерь во внешнем поле полностью соответствует теории ФМР: при нулевом внешнем поле СВЧ магнитная проницаемость в направлении ОЛН единична, при намагничивании векторы магнитного момента поворачиваются вдоль поля, магнитная проницаемость описывается законом ЛЛГ с хорошей точностью, зависимость частоты резонанса от внешнего поля подчиняются формуле Киттеля, параметр Аше при намагничивании до насыщения стремится к единице. Найденные из этих уравнений магнитные характеристики материала соответствуют справочным данным и результатам измерений методом ФМР и магнитостатическим методом.

## 4 ИССЛЕДОВАНИЕ СВЧ МАГНИТНОЙ ПРОНИЦАЕМОСТИ КОМПОЗИТНЫХ МАТЕРИАЛОВ

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 [82] показано, что использование некоторых формул смешения, например, теории эффективной среды, для расчета эффективной магнитной проницаемости композитов приводит к искажению формы пика магнитных потерь. Т.к. классическая теория ФМР рассматривает магнитные свойства отдельных ФМ частиц, анализ магнитных свойств композитов необходимо проводить применительно к собственной магнитной проницаемости частиц, а не к эффективной проницаемости композитов.

Для этого необходимо восстановить собственную проницаемость, используя известные формулы смешения. Обычно считают, что внешнее магнитное поле влияет только на собственную магнитную проницаемость частиц, не меняя морфологию композита. Такие параметры формул смешения, как эффективный форм-фактор включений и порог протекания, должны оставаться неизменными. Следовательно, формула смешения должна корректно восстанавливать собственную магнитную проницаемость включений и при приложении внешнего поля, что будет проверено в пятом разделе.

Стандартный метод [135, 136] восстановления собственной магнитной проницаемости частиц  $\mu_{вкл}$  основан на одновременной обработке измеренных диэлектрической  $\epsilon_{ком}$  и магнитной  $\mu_{ком}$  проницаемостей композитов. Диэлектрическая проницаемость проводящих включений настолько высока в СВЧ диапазоне, что СВЧ эффективная диэлектрическая проницаемость композитов с

такими включениями не зависит от собственной проницаемости включений, а определяется их морфологией. Очень высокий контраст между диэлектрической проницаемостью включений и матрицы  $|\epsilon_{вкл}/\epsilon_{матр}| \sim 10^9$  для металлических частиц позволяет определять параметры модели смешения, например, форм-фактор  $N$  и порог протекания  $p_c$ , из измеренной зависимости диэлектрической проницаемости от концентрации наполнителя  $\epsilon_{ком}(p)$  гораздо точнее, чем из аналогичной зависимости проницаемости  $\mu_{ком}(p)$ , где  $\mu_{вкл}$  является дополнительным неизвестным параметром.

Целью раздела является поиск формулы смешения, корректно восстанавливающей собственную магнитную проницаемость включений в нулевом внешнем поле. Проверена применимость формул смешения МГ (1.32), Оделевского (1.37) и Винера (1.35) для описания диэлектрической и магнитной проницаемостей композитов. Исследована возможность использования стандартного метода, рассмотренного выше, для восстановления собственной магнитной проницаемости включений и оценена погрешность определения собственной проницаемости с помощью формулы Оделевского. В качестве объекта исследования использованы композиты, наполненные частицами сендаста, см. подраздел 2.2.

#### **4.1 Измерение частотных зависимостей эффективных материальных параметров композитов**

Измеренная частотная зависимость комплексных диэлектрической и магнитной проницаемостей исследуемых композитов при различной концентрации сферических включений показана на рисунке 4.1. Объёмные доли сферических включений в композите определены с помощью (2.2) и составляют от 12 до 65 %. Кривые измеренных зависимостей для разных долей включений показаны на рисунке разным цветом. Данные диэлектрической проницаемости на высоких частотах искажены из-за влияния высших мод [137] на измерения.

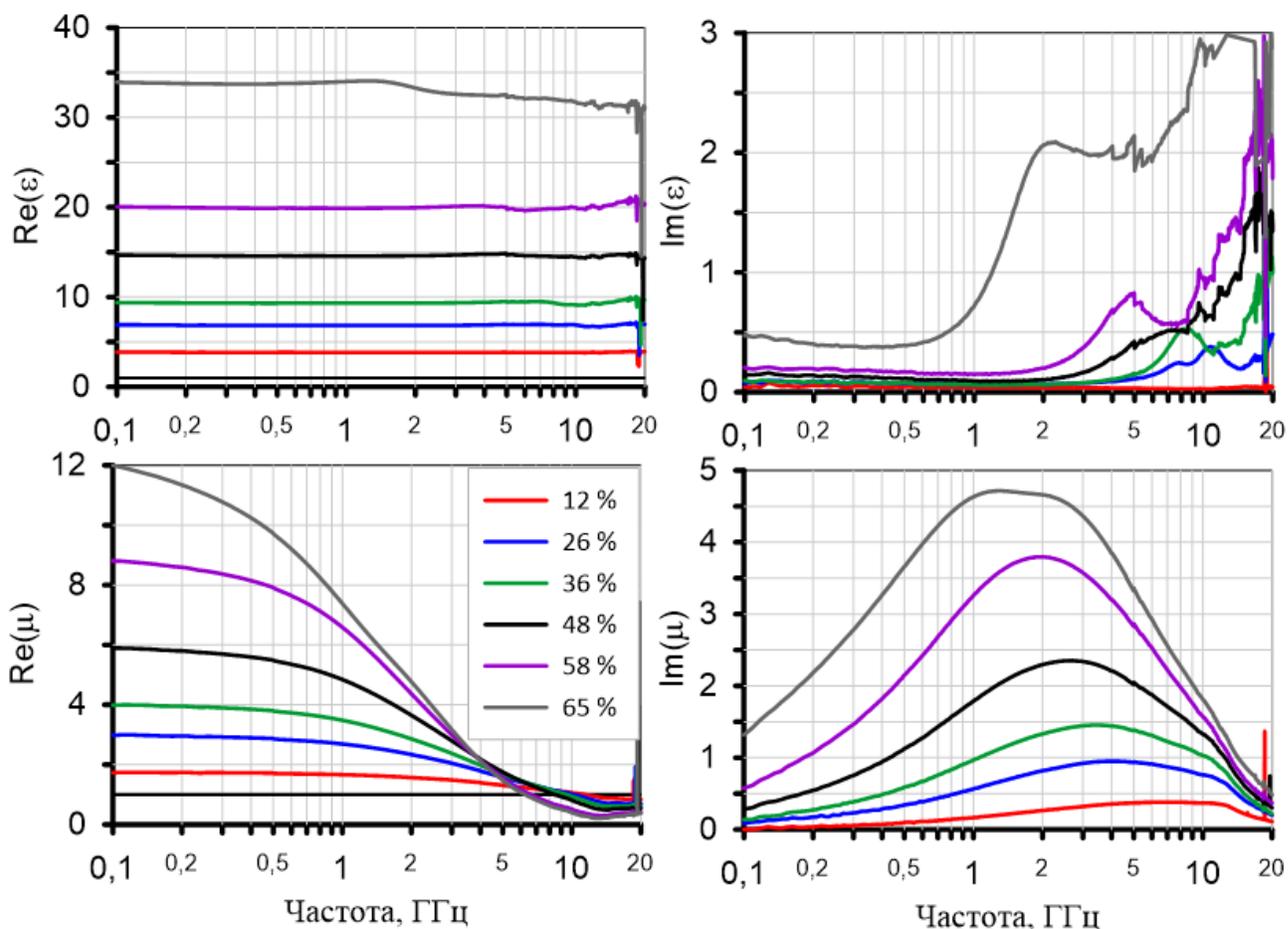


Рисунок 4.1 – Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости композитов при разных концентрациях сферических включений. Объёмные доли включений составляют от 12 до 65 % и указаны в легенде

Измеренная частотная зависимость материальных параметров исследуемых композитов при различной концентрации пластинчатых включений показана на рисунке 4.2. Объёмные доли пластинчатых включений также определены с помощью (2.2) и составляют от 3 до 9 %. Измеренные данные для разных объёмных долей включений показаны разным цветом. Видно, что частота максимума магнитных потерь и частота ФМР (частота, на которой действительная часть магнитной проницаемости становится ниже единицы) не зависят от концентрации включений.

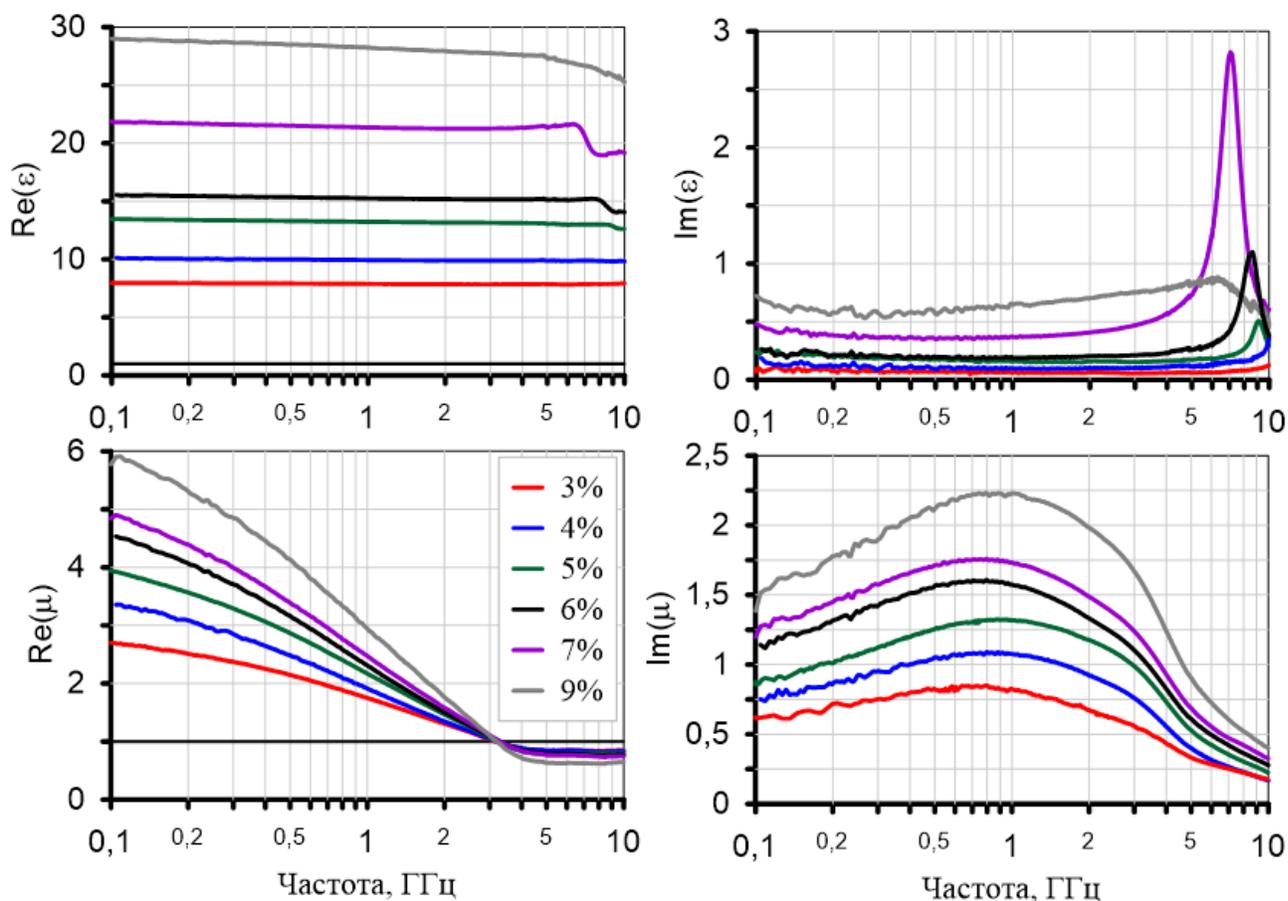


Рисунок 4.2 – Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости композитов при разных концентрациях пластинчатых включений. Объёмные доли включений составляют от 3 до 9 % и указаны в легенде

Измеренная диэлектрическая проницаемость  $\epsilon_{ком}$  исследуемых композитов практически не зависит от частоты в исследуемом диапазоне частот, а наблюдаемые на высоких частотах искажения не связаны со свойством материала, а вызваны влиянием высших мод на измерения. Поэтому в качестве оценки статической диэлектрической проницаемости принято значение диэлектрической проницаемости на частоте 100 МГц. Измеренная зависимость статической диэлектрической проницаемости от объемной доли включений  $p$  для композитов со сферическими и пластинчатыми включениями показана на рисунке 4.3 красными и черными точками, соответственно.

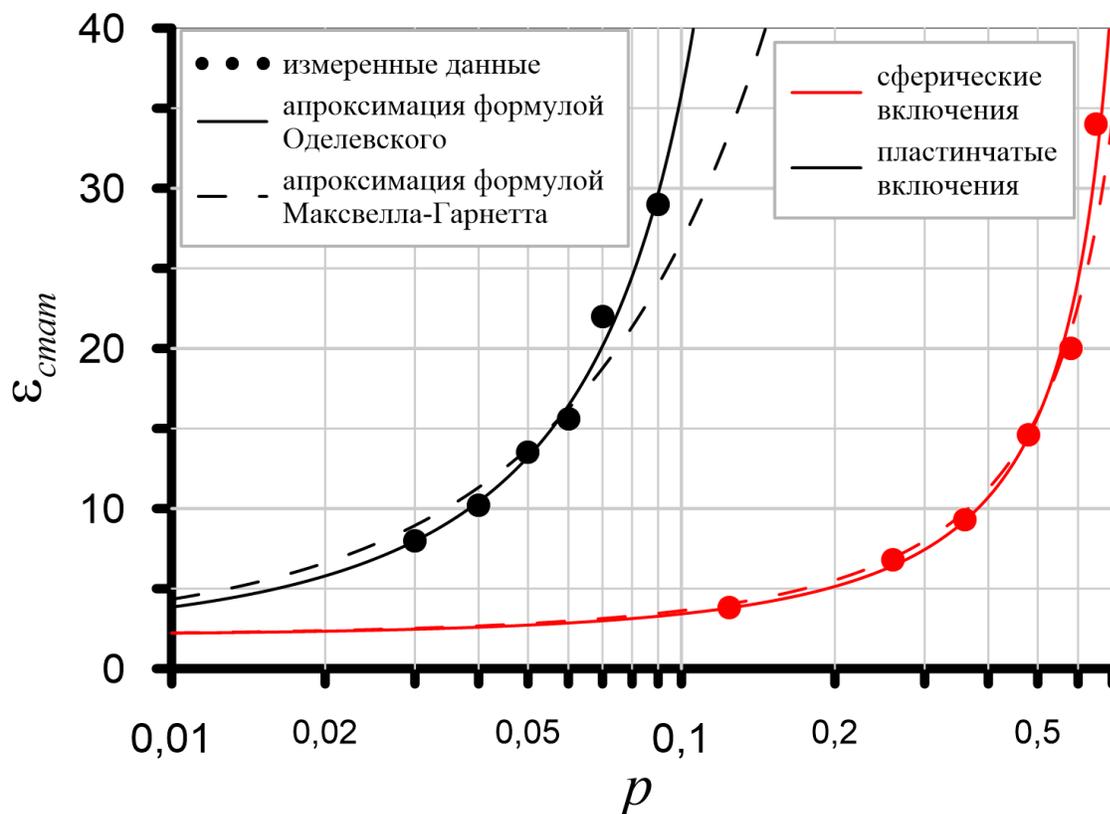


Рисунок 4.3 – Зависимость статической диэлектрической проницаемости композитов от объемной доли включений. Зависимости для пластинчатых включений показаны черным цветом, для сферических – красным. Измеренные данные показаны точками, аппроксимация данных формулой Оделевского показана непрерывными кривыми, аппроксимация формулой МГ показана штриховой кривой

Зависимости статической диэлектрической проницаемости  $\epsilon_{ком}(\rho)$  от объемной доли включений аппроксимированы формулами МГ (1.32) и Оделевского (1.36). Из аппроксимации найдены параметры моделей смешения: эффективный форм-фактор  $N$  и порог протекания  $\rho_c$ . Для сферических включений найденные параметры модели Оделевского составили  $N = 0,178$  и  $\rho_c = 0,86$ . Для пластинчатых частиц параметры равны  $N = 0,013$  и  $\rho_c = 0,20$ . Для модели МГ найденный форм-фактор сферических включений  $N = 0,153$  и пластинчатых включений  $N = 0,0095$ .

Обычно  $N < 1/3$  даже для идеально сферических включений, подобных тем, что показаны на рисунке 2.2(а), поскольку в реальных композитах всегда присутствуют кластеры как минимум двух соседних сфер. Небольшая доля этих кластеров приводит к снижению эффективного форм-фактора по сравнению с его

теоретическим значением даже в случае композита с малыми концентрациями включений.

Видно, что в случае пластинчатых включений измеренные зависимости гораздо лучше согласуются с уравнением Оделевского, чем с уравнением МГ. Небольшие отклонения могут быть вызваны ошибками измерения материальных параметров композитов и концентрации. В случае сферических включений различие между результатами, полученными из уравнений Оделевского и МГ, невелико.

Микроскопическая оценка размера пластинок дает толщину около 1 мкм и средний диаметр около 50 мкм, что соответствует отношению толщины плоского эллипсоида к диаметру  $d/D = 0,02$ . Из отношения толщины плоской частицы к диаметру с помощью уравнения (1.2) может быть найден её форм-фактор. Найденных из геометрических размеров форм-фактор составляет  $N=0,015$ , а найденный из формулы смещения Оделевского  $N = 0,013$ . Небольшое отличие значений форм-факторов может быть связано с кластеризацией частиц и погрешностями в определении диэлектрической проницаемости и концентрации включений.

#### 4.2 Восстановление собственной магнитной проницаемости включений

С помощью производной по  $\mu_{ком}$  от уравнения Оделевского (1.37) может быть рассчитано влияние форм-фактора  $N$ , концентрации  $p$  и ошибки измерений магнитной проницаемости композита  $\Delta\mu_{ком}$  на ошибку определения собственной магнитной проницаемости включений  $\Delta\mu_{вкл}$ :

$$\Delta|\mu_{вкл}| = \frac{1}{p} [ (|\mu_{вкл}| - 1) \left(1 - \frac{p}{p_c}\right) N + 1 ]^2 \times \Delta|\mu_{ком}|. \quad (4.1)$$

Уравнение (4.1) показывает, что ошибка  $\Delta\mu_{вкл}$  приблизительно пропорциональна квадрату форм-фактора  $N^2$  и квадрату восприимчивости включений  $(\mu_{вкл} - 1)^2$  и обратно пропорциональна концентрации включений.

Таким образом, определение магнитной проницаемости включений из модели Оделевского является достаточно точным только при низком значении  $\mu_{вкл}$ . Точное определение более высоких значений  $\mu_{вкл}$  возможно при измерении композитов, наполненных близко к порогу протекания. Собственная магнитная проницаемость пластинчатых частиц определяется точнее, чем сферических, однако композиты со сферическими включениями могут быть наполнены до более высоких концентраций.

Найденные из данных диэлектрической проницаемости в предыдущем подразделе значения параметров  $N$  и  $p_c$  использованы для восстановления собственной магнитной проницаемости включений  $\mu_{вкл}(f)$  по формуле Оделевского. Частотная зависимость собственной магнитной проницаемости пластинчатых включений, восстановленная по формуле смешения Оделевского, показана на рисунке 4.4. Формула смешения применена к эффективной магнитной проницаемости композитов всех исследованных концентраций.

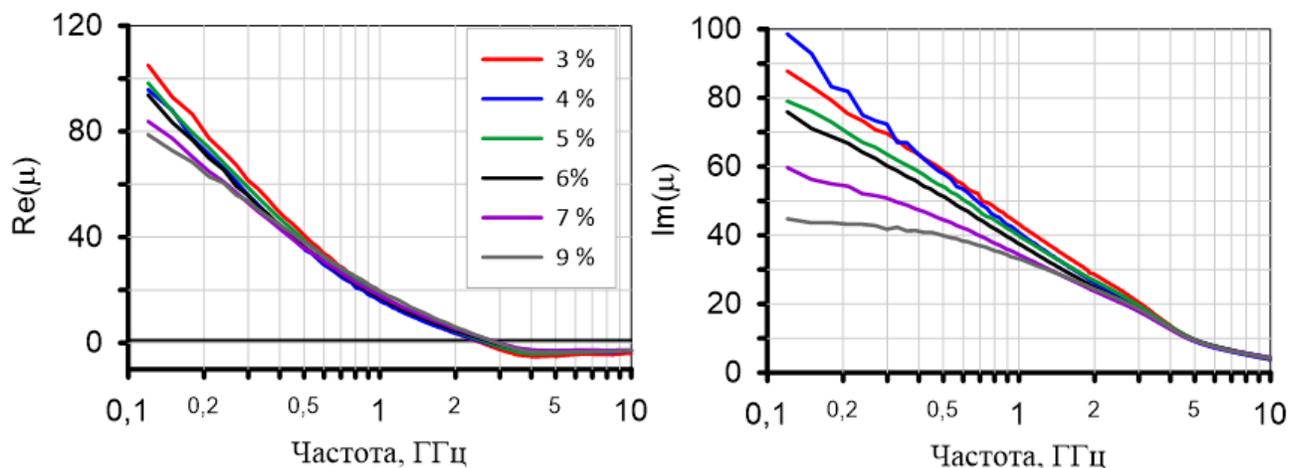


Рисунок 4.4 – Собственная магнитная проницаемость пластинчатых включений, восстановленная по формуле смешения Оделевского с форм-фактором  $N = 0,013$  и порогом протекания  $p_c = 0,20$ . Объемные доли включений обозначены цветом и указаны в легенде

Видно, что восстановленная собственная магнитная проницаемость отличается для разных концентраций включений. Наибольшее отличие наблюдается в области сотен МГц. Причем видна систематическая ошибка: чем больше концентрация включений, тем меньше действительная и мнимая части

магнитной проницаемости. Таким образом, формула смешения Оделевского, корректно описывающая диэлектрическую проницаемость пластинчатых включений сендаста, неприменима к магнитной проницаемости.

Частотная зависимость собственной магнитной проницаемости сферических включений, восстановленная по формуле смешения Оделевского из эффективной магнитной проницаемости композитов разных концентраций, показана на рисунке 4.5. В данном случае погрешность в области сотен МГц также высока, однако отклонения от среднего значения не зависят от концентрации включений. Наибольшее отклонение от среднего значения имеет собственная проницаемость 26% композита, показанная синей кривой на рисунке 4.5. Небольшая погрешность при измерении эффективной магнитной проницаемости композита рассматриваемой концентрации на частотах менее 1 ГГц приводит к отличию собственной магнитной проницаемости на этих частотах более чем в 4 раза. Погрешность определения собственной магнитной проницаемости включений (4.1) может превышать погрешность измерения эффективной проницаемости в десятки раз.

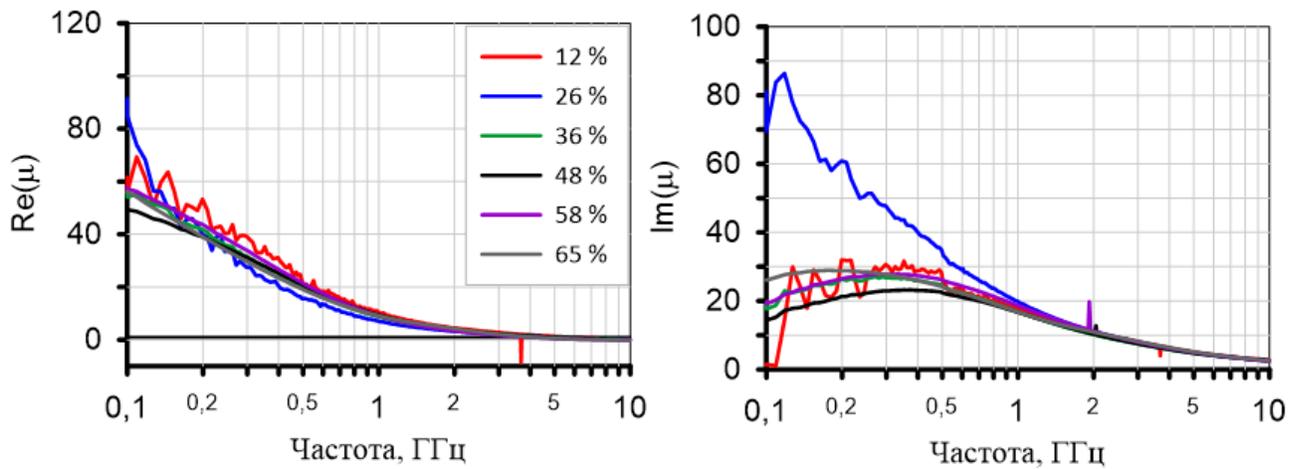


Рисунок 4.5 – Собственная магнитная проницаемость сферических включений, восстановленная по формуле смешения Оделевского с форм-фактором  $N = 0,178$  и порогом протекания  $p_c = 0,86$ . Объемные доли включений обозначены цветом и указаны в легенде

Таким образом, восстановление собственной магнитной проницаемости с помощью формул Оделевского или Максвелла Гарнетта затруднительно из-за высокой погрешности. Уменьшить ошибку определения собственной

проницаемости возможно, используя широкий диапазон концентраций включений исследуемых композитных материалов, что не всегда возможно. Увеличение концентрации включений приводит к повышению хрупкости образца.

Часто эффективную магнитную проницаемость композитов, наполненных пластинчатыми частицами, описывают формулой смешения Винера (1.35). Формула смешения Винера является частным случаем формул МГ и Оделевского и применима при  $N\chi_{\text{вкл}} \ll 1$ . В этом случае собственную магнитную проницаемость частиц находят как отношение эффективной магнитной проницаемости композита к объемной доле включений  $p$ . Формула Винера применима либо в случае малого форм-фактора включений, что справедливо для пластинчатых частиц, либо в случае малого контраста между проницаемостями матрицы и включений.

Применение формулы смешения Винера может быть обосновано следующим образом. Собственная диэлектрическая проницаемость ФМ включений в СВЧ диапазоне крайне велика, в связи с чем СВЧ диэлектрические свойства композитов не зависят от собственных свойств включений и целиком определяются морфологией композита. Собственная магнитная проницаемость включений на несколько порядков меньше диэлектрической, и морфология не оказывает такого сильного влияния на эффективную магнитную проницаемость композитного материала. Она определяется собственными свойствами частиц.

О возможности описания рассматриваемых композитов формулой Винера говорит независимость частоты максимума магнитных потерь и частоты ФМР от концентрации включений. Частотная зависимость собственной магнитной проницаемости, найденная по формуле смешения Винера, показана на рисунке 4.6. Восстановленную собственную магнитную проницаемость частиц с хорошей точностью можно считать одинаковой для всех концентраций включений. Отклонения от среднего значения случайны и не зависят от концентрации в отличие от магнитной проницаемости, восстановленной с помощью формулы Оделевского.

Таким образом, эффективная магнитная проницаемость композитов, наполненных пластинчатыми частицами сендаста, подчиняется формуле смешения Винера (1.35).

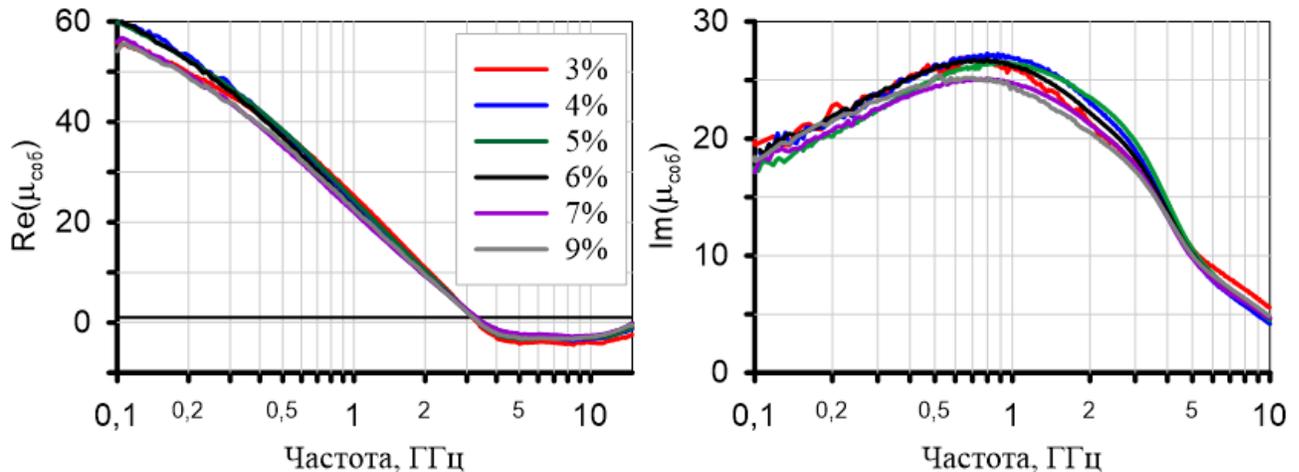


Рисунок 4.6 – Частотная зависимость восстановленной по формуле Винера собственной магнитной проницаемости частиц. Объемные доли включений составляют от 3 до 9 % и указаны в легенде

К композитам, наполненным сферическими включениями, формула Винера неприменима из-за высокого значения форм-фактора. Исследование композитов, наполненных сферическими включениями, при приложении внешнего поля затруднительно из-за высокой погрешности при определении собственной магнитной проницаемости включений и высокого поля насыщения. В следующем разделе будет исследована собственная магнитная проницаемость пластинчатых частиц, найденная с помощью формулы Винера, при приложении внешнего магнитного поля.

Интерпретация наблюдаемых магнитных потерь затруднительна без измерений магнитной проницаемости во внешнем магнитном поле. Определению физических механизмов, приводящих к появлению СВЧ магнитных потерь, посвящен следующий раздел диссертационной работы.

### 4.3 Выводы к разделу 4

Показано, что диэлектрическая проницаемость исследуемых композитных материалов с высокой точностью описывается формулой смешения Оделевского.

Размер пластинчатых включений, рассчитанный из найденного форм-фактора, хорошо согласуется с реальным размером частиц, найденным из размера сит и микрофотографий. Обработка тех же экспериментальных данных с помощью формулы Максвелла Гарнетта приводит к плохому согласию между измеренными и рассчитанными значениями.

Оценена погрешность определения собственной магнитной проницаемости включений с помощью формулы Оделевского. Показано, что восстановление собственной магнитной проницаемости с помощью формул Оделевского или Максвелла Гарнетта затруднительно из-за высокой погрешности. Уменьшить ошибку определения собственной проницаемости возможно с использованием широкого диапазона концентраций включений исследуемых композитных материалов. Формула смешения Винера корректно описывает магнитную проницаемость исследованных композитных материалов с объемной концентрацией пластинчатых включений сендаста менее  $(9,0 \pm 0,3) \%$ .

## **5 ИССЛЕДОВАНИЕ СВЧ МАГНИТНОЙ ПРОНИЦАЕМОСТИ КОМПОЗИТНЫХ МАТЕРИАЛОВ ВО ВНЕШНЕМ ПОСТОЯННОМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ**

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 исследования выбраны композиты, наполненные пластинчатыми частицами сендаста, магнитная проницаемость которых подчиняется простейшей формуле смешения – формуле Винера [99, 138]. На композитных материалах, магнитная проницаемость которых подчиняется формуле Винера, легче учитывать влияние постоянных размагничивающих полей при измерении во внешнем магнитном поле. Другие формулы смешения приводят к сдвигу максимума магнитных потерь при изменении концентрации.

Исследование СВЧ магнитных свойств композитов проведено с помощью метода, проверенного в третьем разделе на тонких ФМ плёнках на гибкой подложке. Метод заключается в измерении СВЧ магнитной проницаемости исследуемого материала в зависимости от частоты и внешнего магнитного поля. Измерения проведены методом НРУ в проходной коаксиальной измерительной линии при приложении внешнего однородного постоянного магнитного поля в направлении коаксиальной оси.

Возможность менять внешнее магнитное поле может позволить определить физические механизмы, ответственные за возникновение различных пиков магнитных потерь, подробно изучить переход из размагниченного в намагниченное состояние и связать магнитные характеристики в размагниченном и намагниченном состоянии, что и будет сделано в данном разделе.

Объектом исследования выбраны композиты, содержащие пластинчатые частицы сендаста. Они представляют интерес для практического применения благодаря высоким значениями магнитной проницаемости в области сотен МГц, малому весу и стойкости к высоким температурам. Для данного исследования важную роль играет низкое поле насыщения исследуемых композитов, что позволяет намагнитить образец до насыщения в поле, создаваемом катушкой.

Раздел состоит из четырёх подразделов. В подразделе 5.1 рассмотрены особенности измерений частотной зависимости магнитной проницаемости при приложении внешнего поля. Исследована возможность восстановления собственной магнитной проницаемости частиц из магнитной проницаемости композитов при приложении внешнего магнитного поля. В подразделе 5.2 с помощью анализа измеренных данных определены механизмы, ответственные за возникновение наблюдаемых пиков потерь. Показано, что приложение внешнего магнитного поля приводит к изменению магнитной структуры частиц. В подразделе 5.3 обнаружено расщепление пика магнитных потерь при приложении внешнего магнитного поля. Исследованы особенности намагничивания композитных материалов с изотропным и анизотропным распределением частиц. В подразделе 5.4 сформулированы основные выводы к разделу 5.

### **5.1 Измерение частотных зависимостей эффективной магнитной проницаемости композитов при приложении внешнего поля**

Анализ магнитных свойств композитов необходимо проводить применительно к собственной магнитной проницаемости частиц, а не к эффективной проницаемости композитов. Подраздел посвящен исследованию собственной магнитной проницаемости пластинчатых включений сендаста и применимости формул смешения при приложении внешнего магнитного поля.

Измеренные частотные зависимости материальных параметров исследуемых композитов при различной концентрации включений показаны на рисунке 4.2.

Частотная зависимость собственной магнитной проницаемости включений, найденная с помощью формулы смещения Винера, показана на рисунке 4.6.

Дополнительная сложность восстановления собственной проницаемости во внешнем поле вызвана тем, что внешнее поле внутри частицы уменьшается из-за размагничивания (1.43). Поле  $H_i$  при разных концентрациях включений может быть различным, если внешнее поле размагничивается не на отдельных включениях, а на образце как едином целом. В этом случае образцы большей толщины намагничиваются сильнее, т.к. обладают меньшим форм-фактором в направлении внешнего поля.

Для оценки влияния размагничивания были измерены при приложении внешнего поля частотные зависимости магнитной проницаемости образцов с одинаковой долей включений, но разными толщинами. На рисунке 5.1 показаны данные зависимости для концентрации включений 10% об. Толщины образцов составляли  $d=3$  мм (синяя кривая) и  $d=1,5$  мм (черная кривая), величина внешнего поля для показанных на рисунке кривых  $H_{внеш}=1350$  Э. Видно, что зависимости с хорошей точностью совпадают, частоты резонанса и максимума магнитных потерь одинаковы для образцов разных толщин. Отсюда следует, что внешнее поле размагничивается на частицах либо на кластерах частиц при концентрациях включений, меньших 10 % об. Также причиной одинакового намагничивания образцов разной толщины могло бы быть анизотропное распределение частиц в образце, однако из фотографий, полученных с помощью СЭМ, которые приведены на рисунке 2.4, видно, что образцы изотропны.

Зависимости комплексной магнитной проницаемости исследуемых композитов, нормированные на концентрацию включений (собственная проницаемость включений, найденная по формуле Винера), при приложении внешнего постоянного магнитного поля 900 Э показаны на рисунке 5.2. Видно, что восстановленные по формуле Винера частотные зависимости собственной магнитной проницаемости неодинаковы для разных концентраций включений. При

этом наблюдается систематическое различие в значениях магнитной проницаемости: чем больше концентрация включений, тем меньше частота резонанса и максимума магнитных потерь.

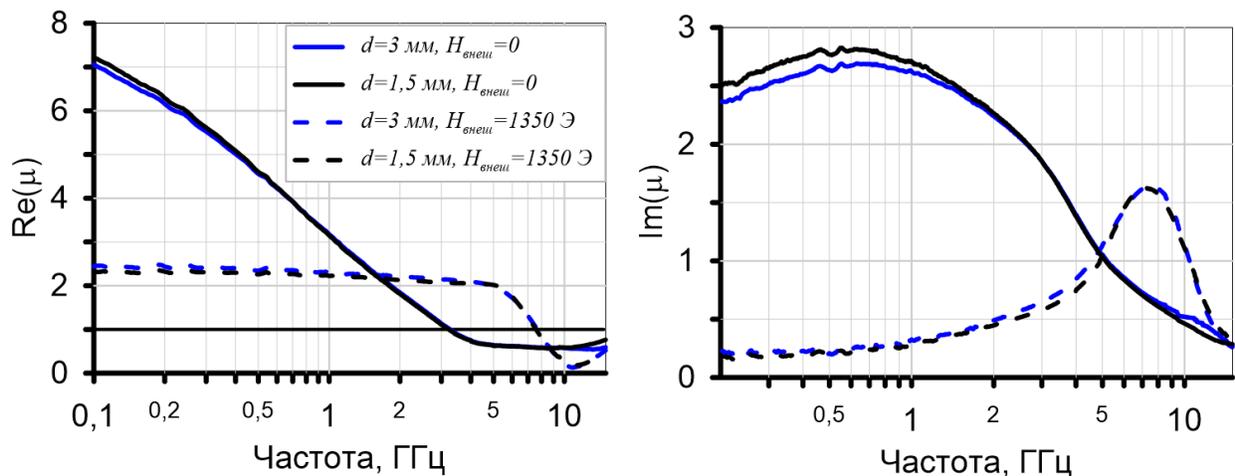


Рисунок 5.1 – Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости образцов с концентрацией включений 10% и толщиной 3 мм (синяя кривая) и 1,5 мм (черная кривая) при нулевом внешнем поле (непрерывные кривые) и в поле 1350 Э (штриховые кривые)

Измеренные зависимости собственных магнитных потерь, найденных по формуле Винера, от внешнего магнитного поля показаны на рисунке 5.3. Частоты измерений фиксированы и составляют 1, 5 и 10 ГГц. Разный цвет кривых соответствует разным концентрациям. В отсутствие внешнего поля собственные магнитные потери одинаковы для всех концентраций, что говорит о корректности формулы смещения Винера. При увеличении внешнего магнитного поля кривые расходятся. Причем кривые различаются по величине магнитных потерь, и учётом размагничивания кривые нельзя привести к одному виду. Также видна зависимость: чем больше концентрация включений, тем ниже величина максимума магнитных потерь, и тем большее поле необходимо для достижения максимума. Таким образом, корректная при нулевом внешнем поле формула смещения при приложении поля становится неприменима. Таким образом, ранее теоретически предсказанная неприменимость стандартных формул смещения для описания

магнитной проницаемости композитов, наполненных неразмагниченными включениями, впервые обнаружена экспериментально.

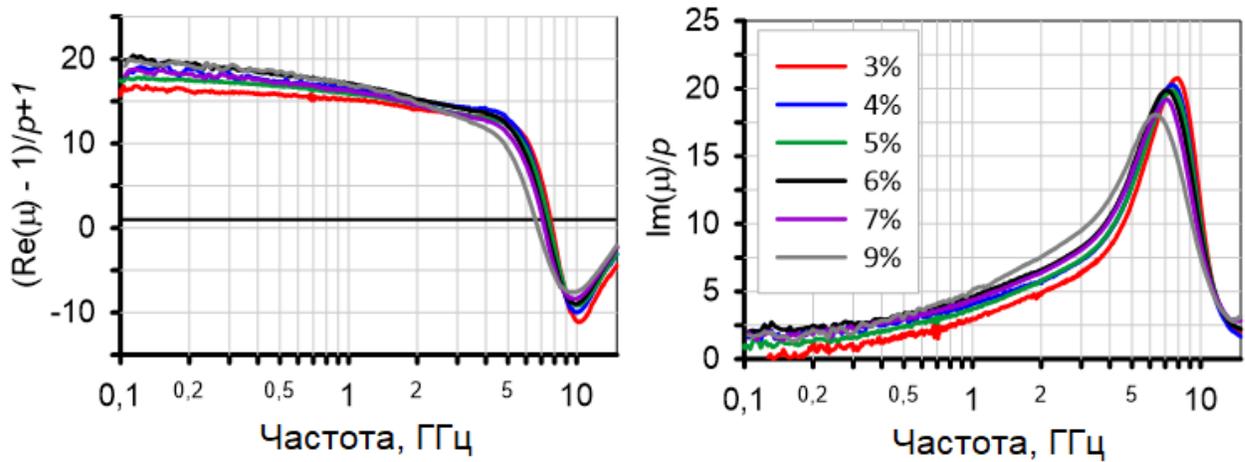


Рисунок 5.2 – Частотные зависимости собственной магнитной проницаемости частиц во внешнем поле 900 Э при разных концентрациях включений. Концентрации включений указаны в легенде

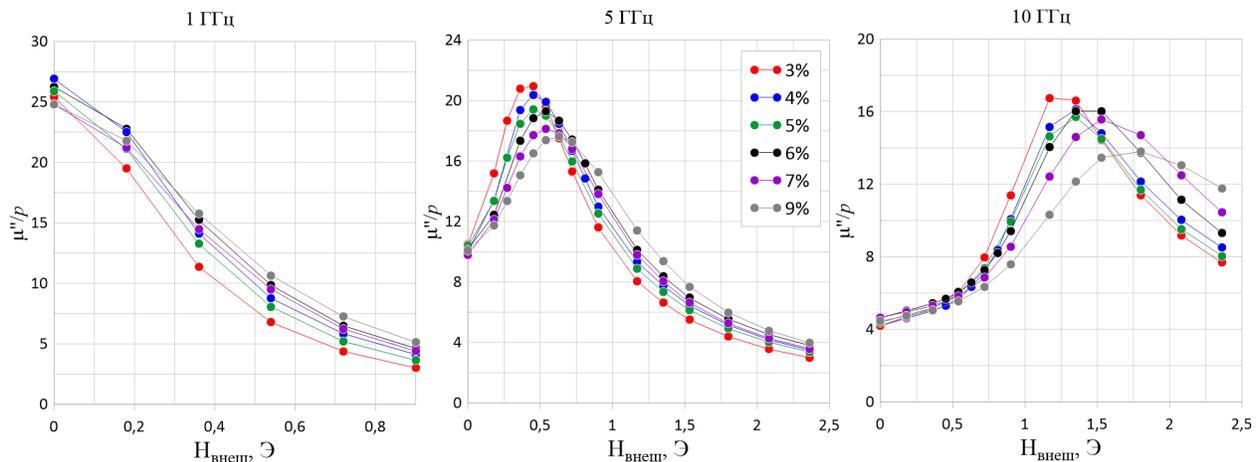


Рисунок 5.3 – Зависимость магнитных потерь, нормированных на концентрацию включений, от внешнего магнитного поля. Частоты измерений фиксированы и указаны над графиками. Концентрации включений обозначены цветом и указаны в легенде. Точки соответствуют измерениям и соединены линиями для наглядности

При невозможности восстановления собственной магнитной проницаемости частиц необходимо проводить анализ эффективной магнитной проницаемости композитов для выяснения причин неприменимости формулы смешения во внешнем поле. Такой анализ даёт возможность исследовать поведение пиков не только при изменении внешнего поля, но и при изменении концентрации включений.

Анализ измеренных данных проведен с помощью аппроксимации частотной зависимости магнитной проницаемости дисперсионным законом Лоренца (1.24). Строго говоря, магнитная проницаемость ФМ частицы описывается дисперсионным законом Ландау – Лифшица – Гилберта (1.23). Однако в случае тонких плёнок или пластинчатых частиц нет существенной разницы между этими дисперсионными законами [82]. При этом параметры дисперсионного закона ЛЛГ могут быть получены из параметров закона Лоренца с помощью (1.25) [133]. Стоит учитывать, что пики магнитных потерь могут иметь нелоренцеву форму, но могут быть описаны суммой нескольких лоренцевых членов, которым не всегда можно приписать чёткий физический смысл.

## **5.2 Анализ измеренных частотных зависимостей магнитной проницаемости**

Частотная зависимость магнитной проницаемости всех изготовленных образцов измерена при внешних магнитных полях до 2400 Э и аппроксимирована тремя Лоренцевыми линиями. Стоит отметить, что композиты всех исследованных концентраций имеют качественно схожее поведение во внешнем поле. На рисунке 5.4 показаны измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости с 5% содержанием включений при приложении внешнего магнитного поля. При нулевом внешнем поле магнитные потери распределены в широкой полосе частот, и пик имеет нелоренцев вид: черные кривые на рисунке 5.4. Частота резонанса и максимума магнитных потерь увеличиваются с ростом внешнего поля, а статическая магнитная проницаемость уменьшается. Видно, что с ростом внешнего поля происходит не просто сдвиг пика магнитных потерь в высокие частоты, как на образцах из тонких плёнок, а изменяется форма дисперсионной зависимости. Наблюдается два эффекта. Первый: при полях выше 400 Э увеличивается вклад высокочастотных магнитных потерь в общую магнитную проницаемость (красная и зеленые кривые). В магнитном поле порядка 1200 Э (фиолетовая кривая)

магнитные потери имеют вид, близкий к лоренцеву. Вторым эффектом наблюдается при полях более 1300 Э – искажается пик магнитных потерь (оранжевая кривая).

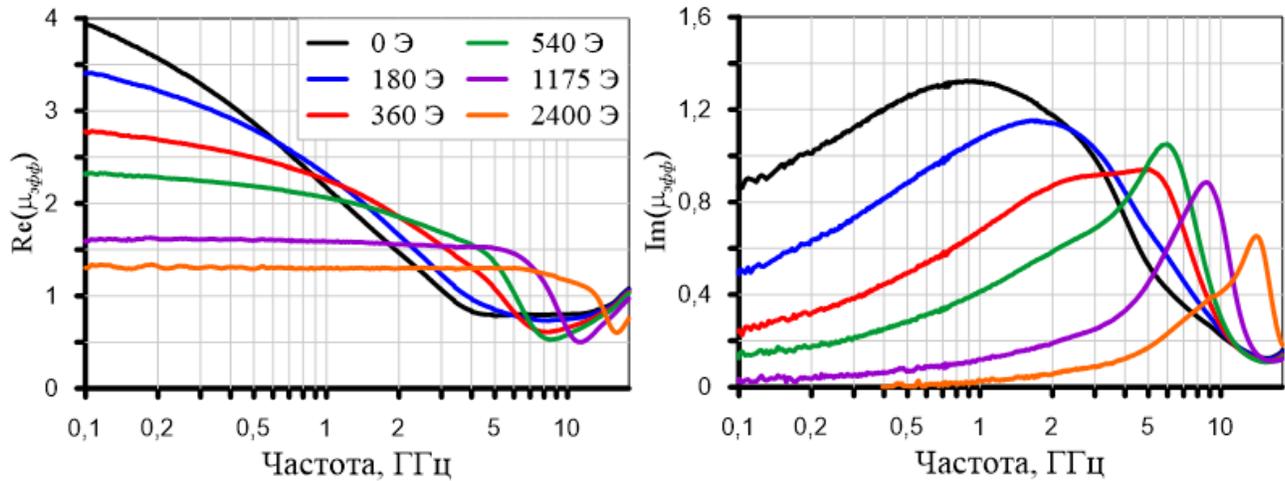


Рисунок 5.4 – Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости при концентрации включений 5 об% при значениях внешнего магнитного поля от 0 до 2400 Э. Цветом показаны различные значения внешнего поля

Сначала рассмотрим первый эффект. Подобное поведение магнитных потерь наблюдается как на анизотропных, так и на изотропных образцах всех исследованных концентраций: от 3 до 9 об.% металлических включений.

Для получения магнитных характеристик и интерпретации полученных данных необходим количественный анализ измеренной магнитной проницаемости. Анализ с помощью аппроксимации дисперсионным законом ЛЛГ затруднен из-за неопределенности параметров закона [32]. Для количественного анализа измеренных данных может быть использована аппроксимация суммой нескольких лоренцевых линий [32, 76–79]. При этом необходимо понимать, что сумма достаточного количества лоренцевых линий может описать любую кривую частотной дисперсии в ограниченном диапазоне частот. Однако проводимые измерения позволяют не просто определить параметры аппроксимации, а найти их зависимость от приложенного поля, что позволяет приписать физический смысл Лоренцевым линиям. Большое количество параметров аппроксимации может уменьшиться при изменении внешнего поля. Например, при намагничивании до насыщения частотная зависимость магнитной проницаемости примет Лоренцев вид, и число параметров аппроксимации

сократится до трёх: амплитуды, частот резонанса и релаксации. О достоверности параметров, определяемых из аппроксимации, может говорить плавность зависимости параметров дисперсионного закона от внешнего поля.

Измеренные кривые с хорошей точностью описываются суммой трех линий Лоренца. Зависимости параметров дисперсионного закона от внешнего поля схожи для разных концентраций. Частотные зависимости магнитных потерь трех пиков, полученных из аппроксимации законом Лоренца, при приложении внешнего поля показаны на рисунке 5.5. Первый и второй пик магнитных потерь обладают схожим поведением: увеличение внешнего поля приводит к уменьшению амплитуды пика и в больших полях они совсем исчезают, при этом частота максимума магнитных потерь практически не зависит ни от концентрации, ни от внешнего поля. Одинаковое поведение пиков может говорить о том, что это один широкий пик, который с хорошей точностью может быть описан суммой двух лоренцевых линий.

Третий пик магнитных потерь появляется лишь при наличии внешнего магнитного поля. Амплитуда этого пика увеличивается до полей около семисот эрстед, затем уменьшается. Пик обладает большей частотой резонанса  $f_{рез}$ , релаксации  $f_{рел}$  и максимума магнитных потерь  $f_{макс}$  по сравнению с первым и вторым пиками, причем характерные частоты увеличиваются с ростом внешнего поля.

Зависимости амплитуды и частоты максимума магнитных потерь второго пика от приложенного внешнего поля при различных концентрациях включений показаны на рисунке 5.6. При полях менее двухсот эрстед пики плохо различимы, и найденные параметры аппроксимации могут быть некорректны, поэтому зависимости построены от 270 Э. Найденные из аппроксимации резонансные частоты низкочастотных пиков могут иметь величину порядка сотен ГГц:  $f_{рел} \ll f_{рез}$ , то есть пики имеют вид Дебаевской релаксации. Это связано с малым отличием релаксации от резонанса на частотах меньше частоты релаксации и с наличием в области резонансной частоты высокочастотного пика, который затрудняет её

нахождение. Поэтому на рисунке представлены зависимости частоты максимума магнитных потерь  $f_{\text{макс}}$ . Из рисунка 5.6 видно, что частота максимума магнитных потерь второго пика слабо растёт с увеличением внешнего поля и не зависит от концентрации включений в композите.

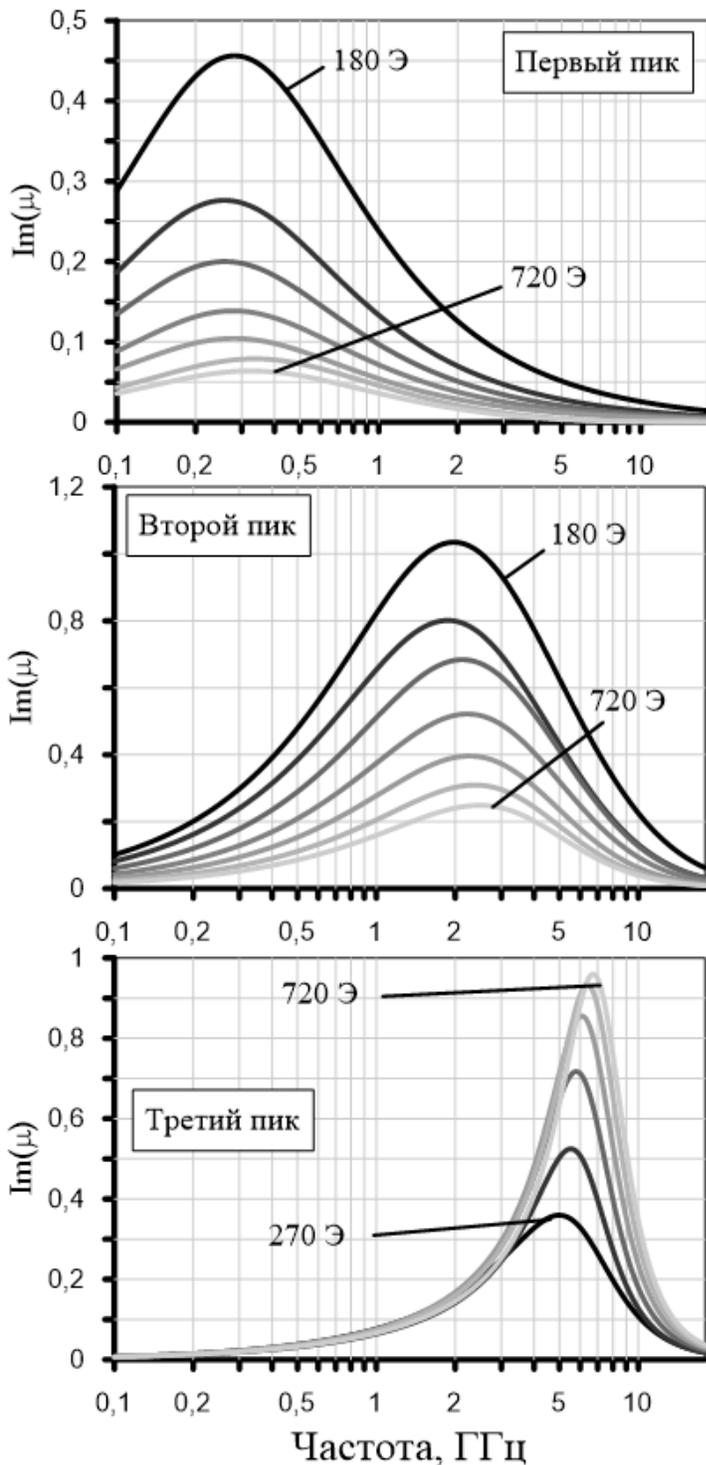


Рисунок 5.5 – Три пика магнитных потерь, полученных из аппроксимации дисперсионным законом Лоренца. Кривые разного цвета обозначают данные, полученные при различных значениях внешнего поля

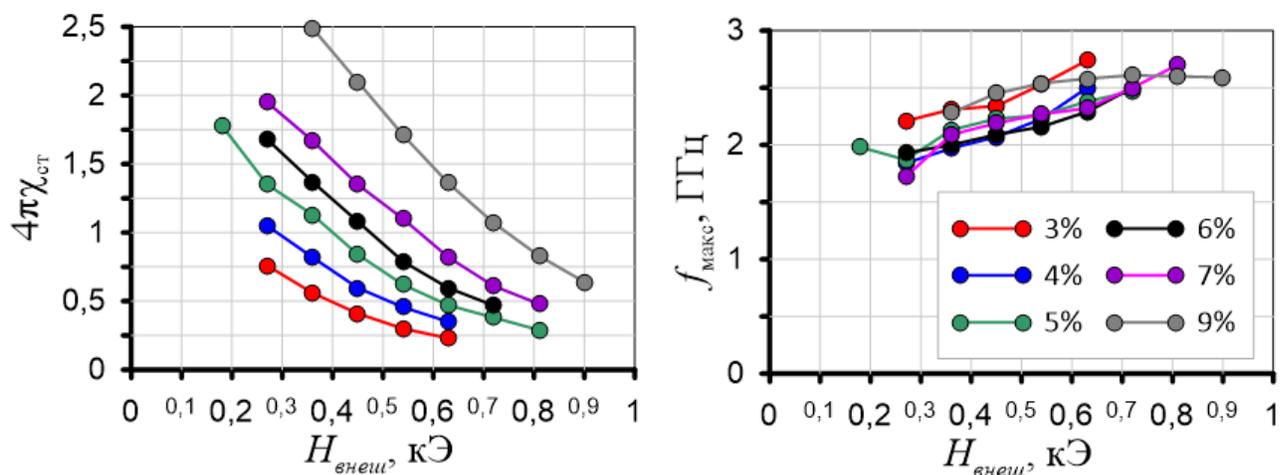


Рисунок 5.6 – Зависимости амплитуды и частоты максимума магнитных потерь второго пика от приложенного внешнего поля при различных концентрациях включений

Зависимости статической проницаемости, частоты релаксации и частоты резонанса третьего пика от приложенного внешнего поля при различных концентрациях включений показаны на рисунке 5.7. Для третьего пика характерен существенный рост частот релаксации и резонанса с увеличением внешнего поля. Также частоты различаются при различных концентрациях включений, причем уменьшение концентрации приводит к росту как частоты релаксации, так и частоты резонанса. Видно, что частота резонанса от внешнего поля, начиная с некоторого значения внешнего поля, линейно зависит от внешнего поля, причем наклон зависимости одинаков для всех концентраций.

Подобное поведение пиков можно объяснить расщеплением ферромагнитного резонанса на доменной структуре в магнитных включениях (моды Полдера–Смита или доменные моды [7–9]). В отсутствие внешнего магнитного поля частицы в композите являются многодоменными. ФМР расщепляется на доменной структуре, и моды Полдера–Смита ответственны за магнитные потери при нулевом внешнем магнитном поле. Средний магнитный момент многодоменной частицы равен нулю. Следовательно, наличие доменной структуры нейтрализует магнитодипольное взаимодействие между близко расположенными частицами, и резонансные частоты одинаковы для магнитной

проницаемости композитов с разной долей включений. Для таких пиков справедлива формула смещения Винера.

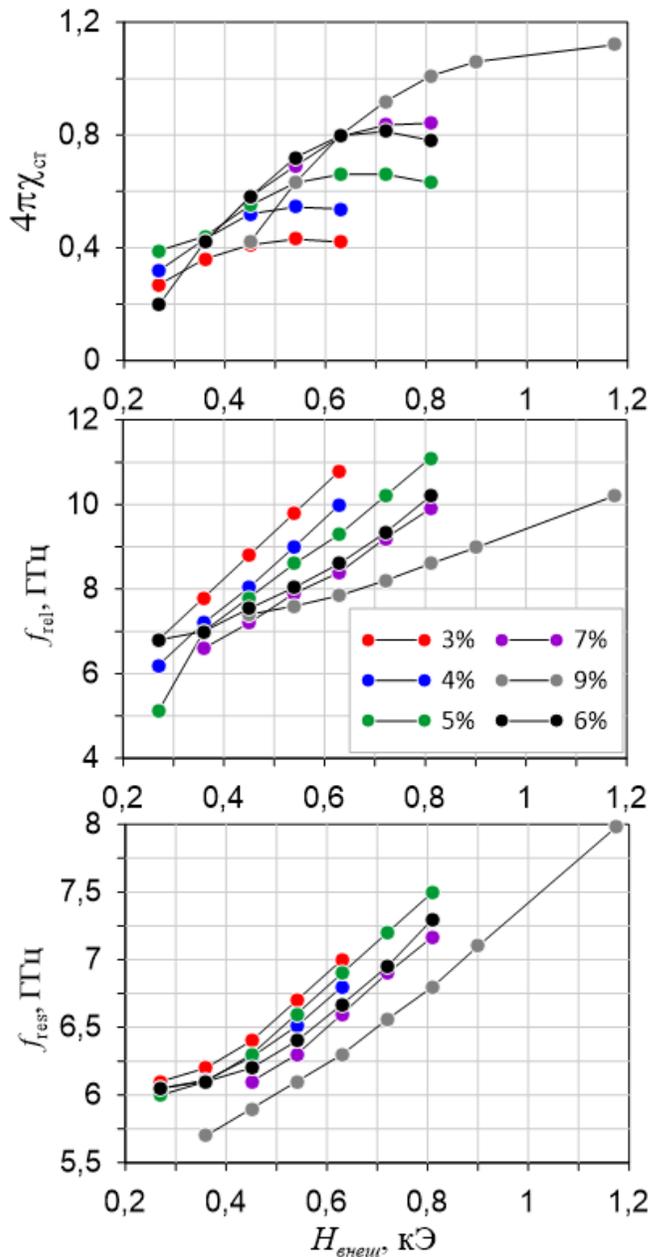


Рисунок 5.7 – Зависимости статической проницаемости, частоты релаксации и частоты резонанса третьего пика от приложенного внешнего поля при различных концентрациях включений. Концентрация включений указана в легенде

Увеличение внешнего поля приводит к исчезновению доменной структуры и уменьшению амплитуды мод Полдера–Смита. Третий пик связан с ФМР на однодоменных частицах. С ростом внешнего поля его вклад в магнитные потери увеличивается, появляется взаимодействие между частицами, и магнитная проницаемость должна описываться другими формулами смещения, которые учитывают магнитодипольное взаимодействие между включениями [59].

Строго говоря, моды Полдера–Смита также являются ФМР, но пики магнитных потерь имеют разные резонансные частоты и поведение во внешнем магнитном поле. Композиты в малом магнитной поле содержат как однодоменные, так и многодоменные частицы из-за распределения частиц по форме, размеру и ориентации. Механизмы намагничивания однодоменных и многодоменных частиц различны. В однодоменных частицах магнитный момент поворачивается в направлении внешнего поля, в многодоменных частицах изменяется размер доменов.

Стоит отметить, что на фотографиях срезов образцов исследованных композитов видно, что даже при объемной доли включений 3% образуются кластеры частиц. Однако образование кластеров не приводит к появлению взаимодействия между частицами, т.к. частота резонанса с увеличением концентрации не меняется. Это также может быть объяснено формированием доменной структуры в частицах.

ФМР расщепляется на доменной структуре две моды, известные как моды Полдера–Смита [7–9]. Высокочастотная мода с частотой  $f_{рез+}$ , которая может быть найдена с помощью (1.14), возбуждается внешним переменным полем, параллельным границам домена. Низкочастотная мода  $f_{рез-}$  возбуждается полем, перпендикулярным границам, и может быть найдена с помощью (1.11). Из-за случайного распределения магнитных моментов магнитные потери композитных материалов наблюдаются в широкой полосе частот от  $f_{рез+}$  до  $f_{рез-}$ .

Зависимость нормированной намагниченности  $M/M_0$  от внешнего поля  $H$ , измеренная с помощью вибрационного магнитометра, показана на рисунке 5.8а. Измеряется коаксиальный образец с объемной долей включений 3%. Найденная намагниченность насыщения  $4\pi M_0$  сендаста составляет около 1,05 Тл. Сендаст обладает малой коэрцитивной силой, из-за чего трудно определить поле, в котором исчезает доменная структура. Для нахождения поля анизотропии применена

методика, предложенная в [134] и использованная в [4] для композитов с пластинчатыми включениями, см. (3.1).

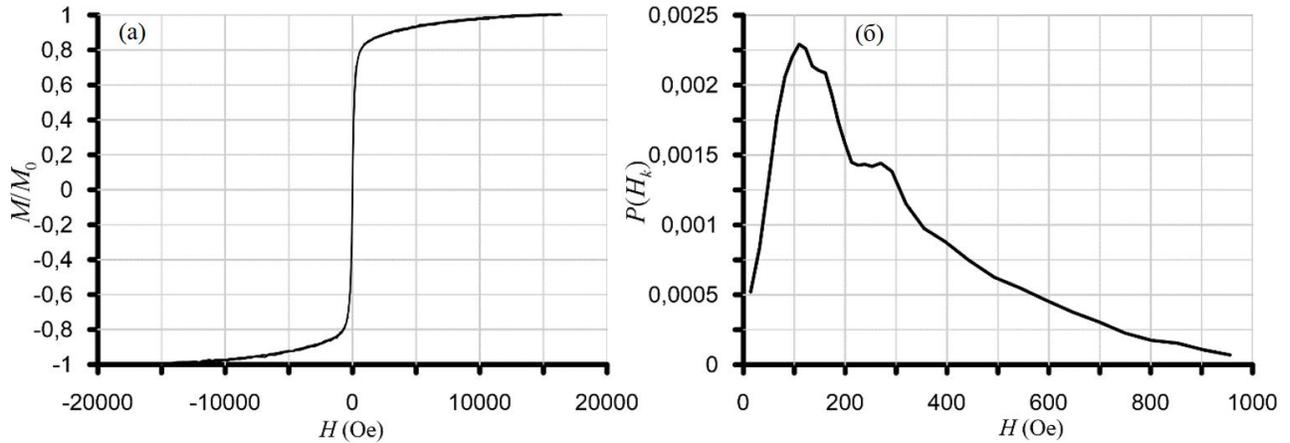


Рисунок 5.8 – а) Кривые намагничивания исследуемых композитов; б) распределение полей анизотропии

Распределение поля анизотропии, полученное по формуле (3.1), показано на рисунке 5.8б. Поле, при котором наблюдается максимум распределения, соответствует полю анизотропии и составляет около 100 Э. Подставляя поле анизотропии и намагниченность насыщения в (1.14) и (1.11), можно найти частоты доменных мод  $f_{рез-} \approx 0,3$  ГГц и  $f_{рез+} \approx 3$  ГГц. Найденные частоты согласуются с данными измерений магнитной проницаемости. В нулевом внешнем поле магнитные потери распределены в широкой полосе частот с максимумом около 1 ГГц, см. рисунки 5.4 и 5.5.

### 5.3 Влияние размагничивающих полей на результат измерений магнитной проницаемости во внешнем магнитном поле

Данный подраздел посвящен исследованию второму эффекту, наблюдаемому в магнитных полях более 1300 Э и приводящему к искажению пика магнитных потерь. Поведение магнитной проницаемости с  $(4,0 \pm 0,2)$  % содержанием включений при приложении внешнего магнитного поля от 950 до 2400 Э показано на рисунке 5.9. Частота резонанса  $f_{рез}$  и частота максимума магнитных потерь  $f_{макс}$  увеличиваются с ростом внешнего поля, а статическая магнитная проницаемость

$\mu_{ст}$  уменьшается. Ожидается, что в больших полях при приближении образца к насыщению пик будет иметь лоренцев вид, а параметры дисперсионной зависимости должны подчиняться формуле Киттеля (1.15). Однако видно, что при больших значениях внешнего поля пик несимметричен и имеет более пологий скат на низких частотах.

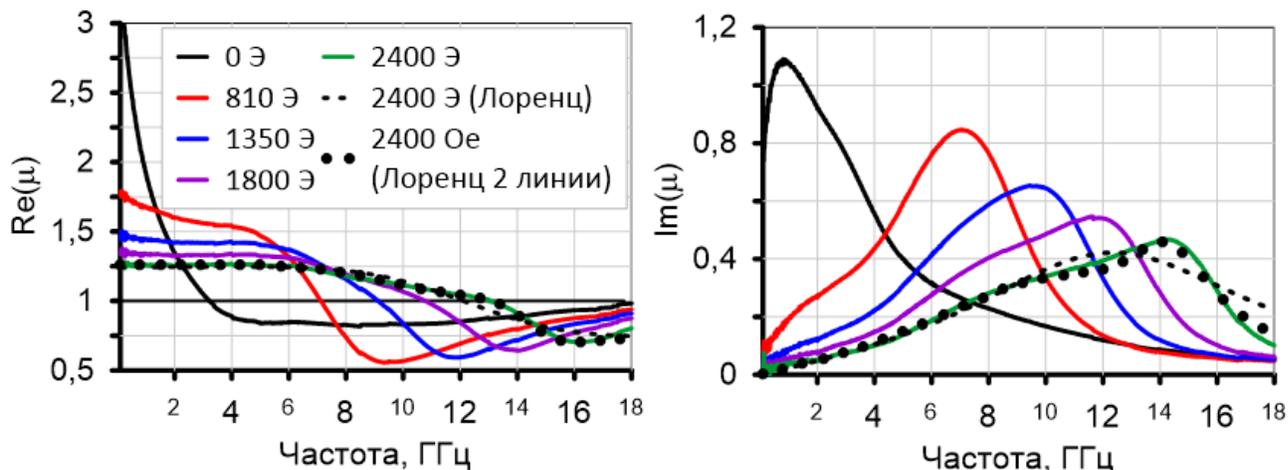


Рисунок 5.9 – Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости при концентрации включений 4 об% при значениях внешнего магнитного поля от 0 до 2400 Э. Значения внешнего магнитного поля указаны в легенде. Аппроксимация линией Лоренца показана штриховой кривой. Аппроксимация двумя линиями Лоренца показана точками

Частотная зависимость магнитной проницаемости всех изготовленных образцов, как и в предыдущем подразделе, аппроксимирована тремя линиями Лоренца. Зависимость параметров резонансов от внешнего магнитного поля от 900 до 2400 Э для образца с содержанием включений 4%об. показана на рисунке 5.10. Низкочастотный пик магнитных потерь связан с модами Полдера–Смита, обнаруженными в предыдущем подразделе. Частота релаксации, резонанса и максимума магнитных потерь слабо зависят от внешнего поля. Амплитуда сильно уменьшается с ростом внешнего магнитного поля, и в поле порядка 1600 Э низкочастотный пик магнитных потерь исчезает.

Видно, что параметры аппроксимации двух высокочастотных пиков обладают поведением, характерным для пиков ФМР: увеличение внешнего поля приводит к уменьшению амплитуды, росту частоты релаксации и росту частоты

резонанса. Стоит отметить, что увеличение внешнего поля приводит к большему расхождению резонансных и релаксационных частот. Таким образом, происходит расщепление пика магнитных потерь, связанного с ФМР, при приложении сильного магнитного поля.

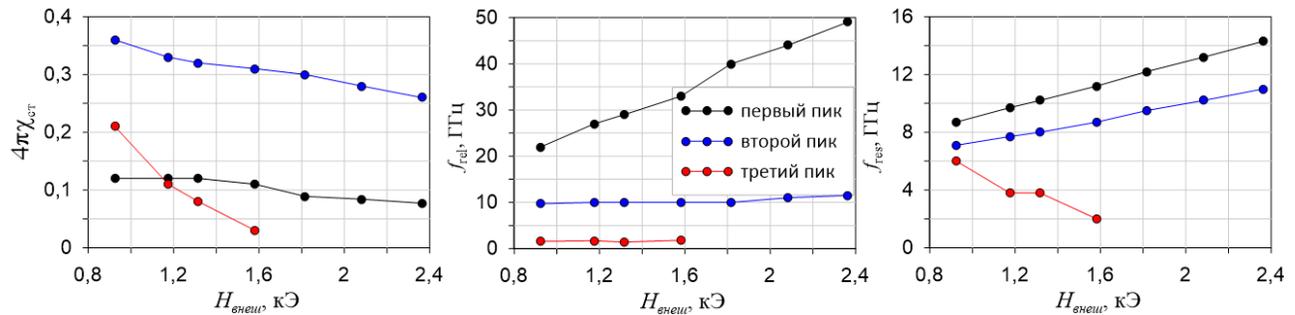


Рисунок 5.10 – Зависимость параметров аппроксимации тремя резонансами Лоренца от внешнего магнитного поля для композита с 4% концентрацией наполнителя

Известно, что наличие скин-эффекта приводит к искажению частотной зависимости магнитной проницаемости [29]. Скин-эффект приводит к расщеплению ФМР на два отдельных пика: первый пик имеет максимум магнитных потерь на частоте скинирования, на которой глубина скин-слоя равна половине размера частицы, а второй пик является следом собственного ферромагнитного резонанса частицы.

Учёт скин-эффекта может быть осложнен из-за разброса частиц в композите по размерам и форме. Оценка толщины частиц по микрофотографиям, полученным с помощью электронного сканирующего микроскопа, даёт величину порядка 1 мкм. Кроме того, учёт влияния скин-эффекта необходимо проводить на собственной магнитной проницаемости частиц, которая может быть найдена из измеренных данных с использованием формул смещения. Как было показано в подразделе 4.2, при отсутствии внешнего магнитного поля собственная магнитная проницаемость частиц может быть восстановлена из эффективной проницаемости композитов по формуле смещения Винера (2.1). Однако приложение внешнего поля меняет магнитную структуру частиц наполнителя, и собственную проницаемость частиц восстановить не удалось.

Тем не менее оценка истинной магнитной проницаемости с вычетом скин-эффекта возможна. На рисунке 5.11 показаны частотные зависимости измеренной магнитной проницаемости (черные кривые) и магнитной проницаемости при вычитании скин-эффекта (красные кривые) при различных значениях внешнего магнитного поля. Скин-эффект незначительно искажает частотную зависимость магнитной проницаемости и не может приводить к расщеплению пика магнитных потерь во внешнем магнитном поле.

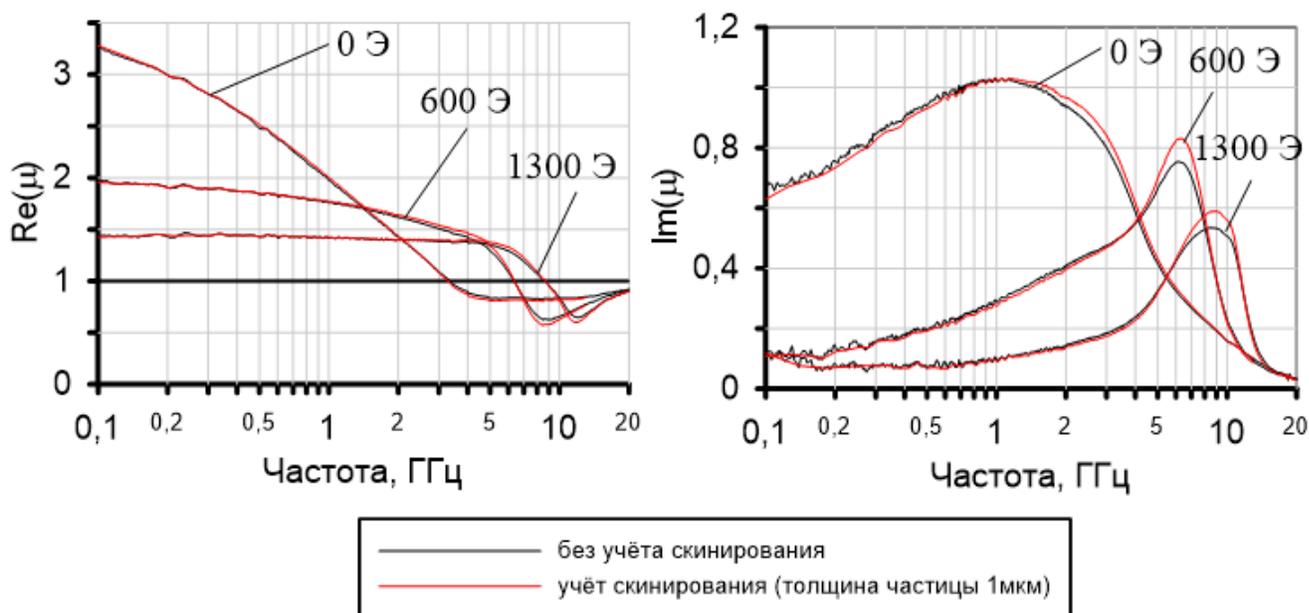


Рисунок 5.11 – Влияние скин-эффекта на измеренную частотную зависимость магнитной проницаемости композита

Эффект расщепления пика в магнитном поле исследован при разных концентрациях частиц в композите, и обнаружено, что расщепления не происходит при концентрации включений в композите, больших  $(7,0 \pm 0,3)\%$  об. Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости композитов с 7% об. содержанием включений показаны на рисунке 5.12. Такое поведение при изменении концентрации включений не может быть объяснено скин-эффектом.

Причиной расщепления пика магнитных потерь во внешнем магнитном поле может быть различная намагниченность частиц с разной ориентацией. Размагничивание приводит к уменьшению внешнего магнитного поля внутри

частицы и описывается формулой (1.43). В случае пластинчатых частиц или тонких плёнок коэффициент размагничивания в направлении, перпендикулярном к плоскости, близок к единице, а два других коэффициента размагничивания близки к нулю. Размагничивание сильнее влияет на частицы, ориентированные перпендикулярно внешнему полю. Магнитное поле, необходимое для намагничивания таких частиц, намного больше, чем для частиц, ориентированных вдоль поля. В исследуемых композитах частицы распределены изотропно и разноориентированные частицы по-разному намагничиваются. Пик, связанный с ФМР, должен расширяться с увеличением внешнего поля. При высокой доле включений частицы располагаются ближе друг к другу, и внешнее поле размагничивается не на отдельных частицах, а на всем образце. И эффект расщепления пиков исчезает при высокой доле включений в композите.

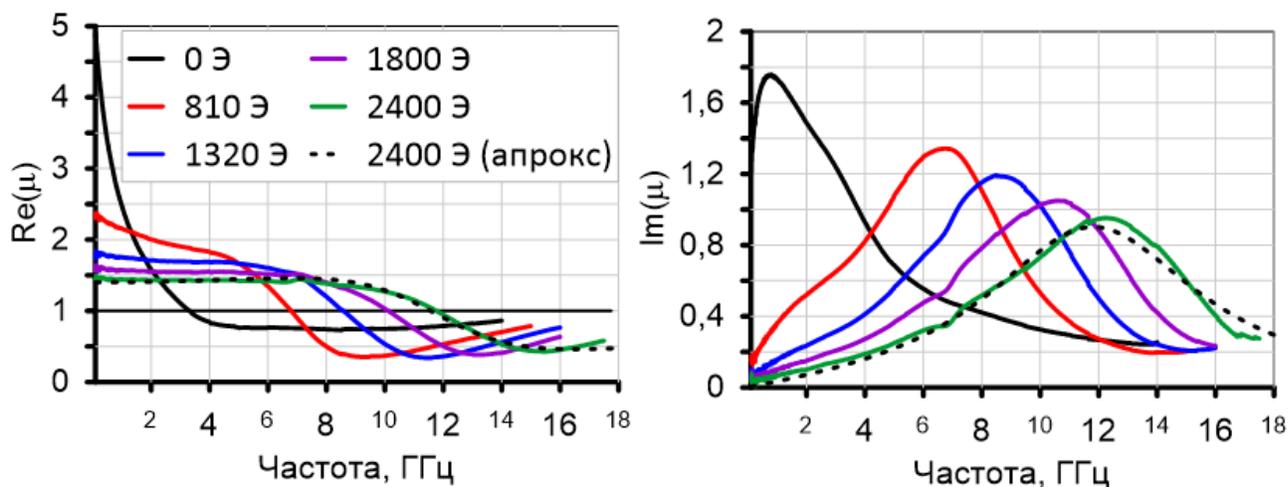


Рисунок 5.12 – Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости композитов с долей включений 7 об.% во внешнем магнитном поле до 2400 Э. Значения внешнего магнитного поля указаны в легенде. Аппроксимация линией Лоренца показана штриховой кривой

Влияние размагничивания исследовано на образцах различной толщины. Измеренная магнитная проницаемость образцов с разной толщиной и долей включений показана на рисунке 5.13. Магнитная проницаемость образцов с долей включений 4% не зависит от толщины образцов, см. рисунок 5.13(а). Заметное несоответствие проницаемости во внешнем поле наблюдается на образцах с долей включений  $(12,0 \pm 0,5) \%$  об., см. штриховые кривые на рисунке 5.13(б). Таким

образом, постоянное магнитное поле размагничивается на отдельных частицах при малой доле включений. Увеличение доли приводит к уменьшению среднего расстояния между включениями, и внешнее поле размагничивается на всем образце. Увеличение толщины образца приводит к уменьшению его размагничивающего фактора в направлении внешнего поля и уменьшению влияния размагничивания.

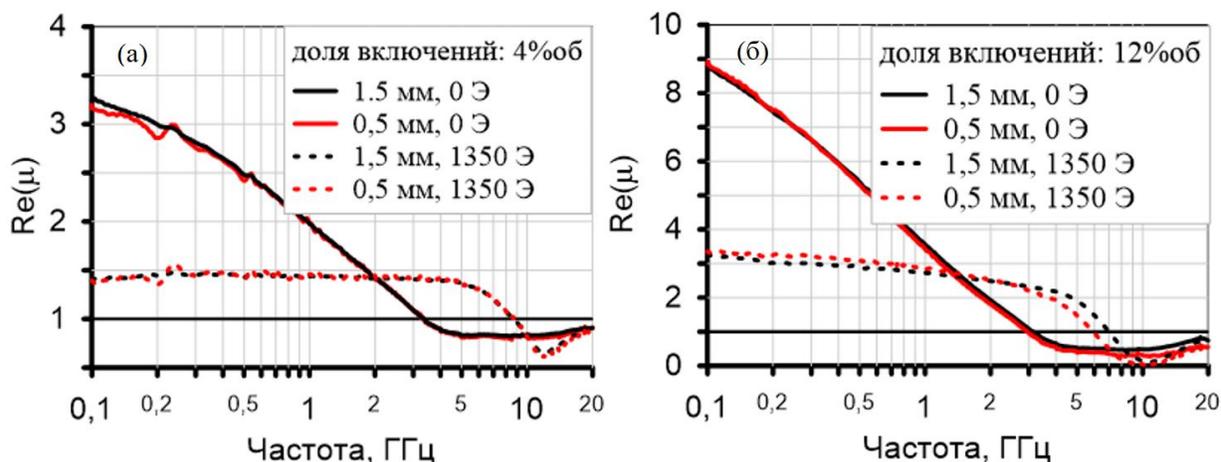


Рисунок 5.13 – Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости для образцов с различной толщиной и объемной долей включений 4% (а) и 12% (б). Красные кривые соответствуют образцам толщиной 0,5 мм, черные кривые – образцам толщиной 1,5 мм.

Для проверки этой гипотезы изготовлено два образца с анизотропным распределением частиц. Методика изготовления анизотропных образцов описана в подразделе 2.2. У первого анизотропного образца пластинчатые частицы ориентированы в плоскости, перпендикулярной коаксиальной оси, см. рисунок 2.5 (б). У второго анизотропного образца частицы могут быть ориентированы во всех плоскостях, параллельных коаксиальной оси, см. рисунок 2.5 (г). В обоих образцах объемная доля включений составляет 4%.

Материальные параметры изготовленных анизотропных образцов измерены методом НРУ во внешнем магнитном поле до 2400 Э. На рисунке 5.14 показаны измеренные частотные зависимости диэлектрической и магнитной проницаемостей анизотропных и изотропного образцов с одинаковой объемной долей включений 4% при нулевом внешнем поле.

Наибольший вклад в измеряемую диэлектрическую проницаемость вносят пластинчатые частицы, ориентированные перпендикулярно коаксиальной оси. Долю таких частиц можно оценить как  $\kappa = 2/3$  в изотропном образце,  $\kappa = 1$  в первом анизотропном образце,  $\kappa = 1/2$  во втором анизотропном образце.

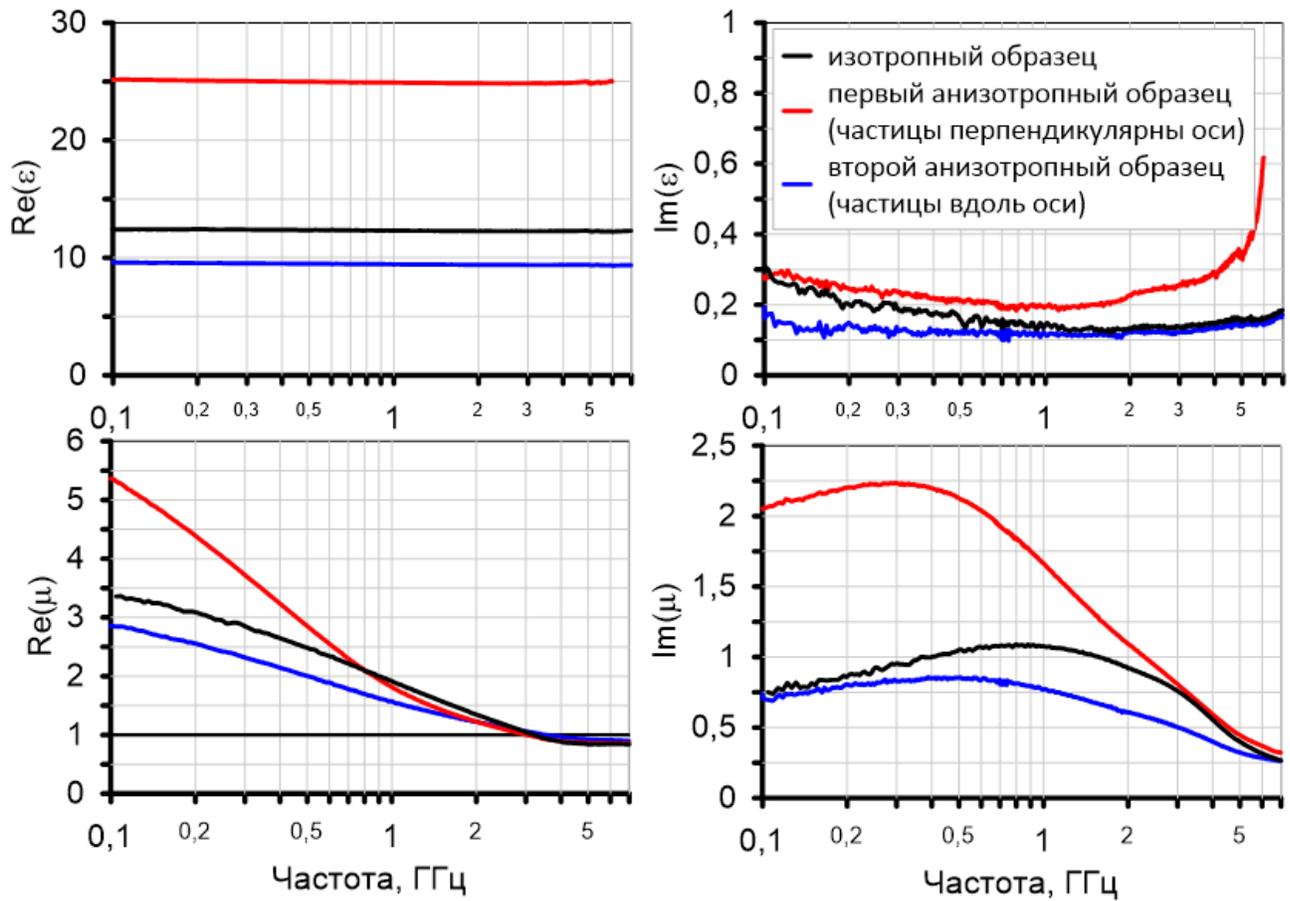


Рисунок 5.14 – Частотные зависимости материальных параметров анизотропных и изотропного образцов с одинаковой объемной долей включений, равной 4 %, при нулевом внешнем поле.

Если ОЛН ориентирована в плоскости частицы, только одна из трех составляющих вносит вклад в измеряемую магнитную проницаемость. Для изотропного распределения магнитных моментов в пространстве  $\kappa = 1/3$ , для изотропного распределения в плоскости  $\kappa = 1/2$ . Для второго анизотропного образца  $\kappa = 1/4$ . В размагниченных частицах величины коэффициента  $\kappa$  такие же, как для диэлектрической проницаемости.

Первый анизотропный образец имеет большие диэлектрическую и магнитную проницаемости по сравнению с изотропным образцом, а второй – меньшие. Наблюдаемое поведение материальных параметров качественно согласуется с теорией. Стоит отметить, что использование композитов с анизотропным распределением частиц может быть полезно для практических применений. Первый анизотропный образец имеет более высокие значения СВЧ магнитных потерь и статической магнитной проницаемости по сравнению с изотропным образцом при таком же весе.

Частотные зависимости магнитной проницаемости, измеренные при приложении внешнего магнитного поля, первого анизотропного образца показаны на рисунке 5.15а, а второго образца – на рисунке 5.15б. Разным цветом показаны кривые для разных значений внешнего поля. Фактор размагничивания в направлении внешнего постоянного магнитного поля у частиц первого образца близок к единице, из-за чего первый анизотропный образец намагничивается слабее, чем изотропный. У второго анизотропного образца наоборот, фактор размагничивания частиц близок к нулю, и образец намагничивается сильнее изотропного. Расщепление пика, характерное для изотропного образца, у второго анизотропного образца не наблюдается. Видно, что магнитная проницаемость второго анизотропного образца имеет Лоренцев вид в полях более 800 Э. Стоит отметить, что первый анизотропный образец может быть не намагничен до такого состояния, при котором происходит расщепление пика.

Результаты измерений магнитной проницаемости анизотропных образцов во внешнем поле подтверждают гипотезу о влиянии размагничивания на отдельных частицах на результат измерений. Изменение величины намагниченности анизотропных образцов свидетельствует о том, что внешнее постоянное магнитное поле действительно размагничивается не на всем образце, а на отдельных включениях. Отсутствие расщепления пика указывает на то, что разноориентированные частицы в изотропном образце по-разному намагничены.

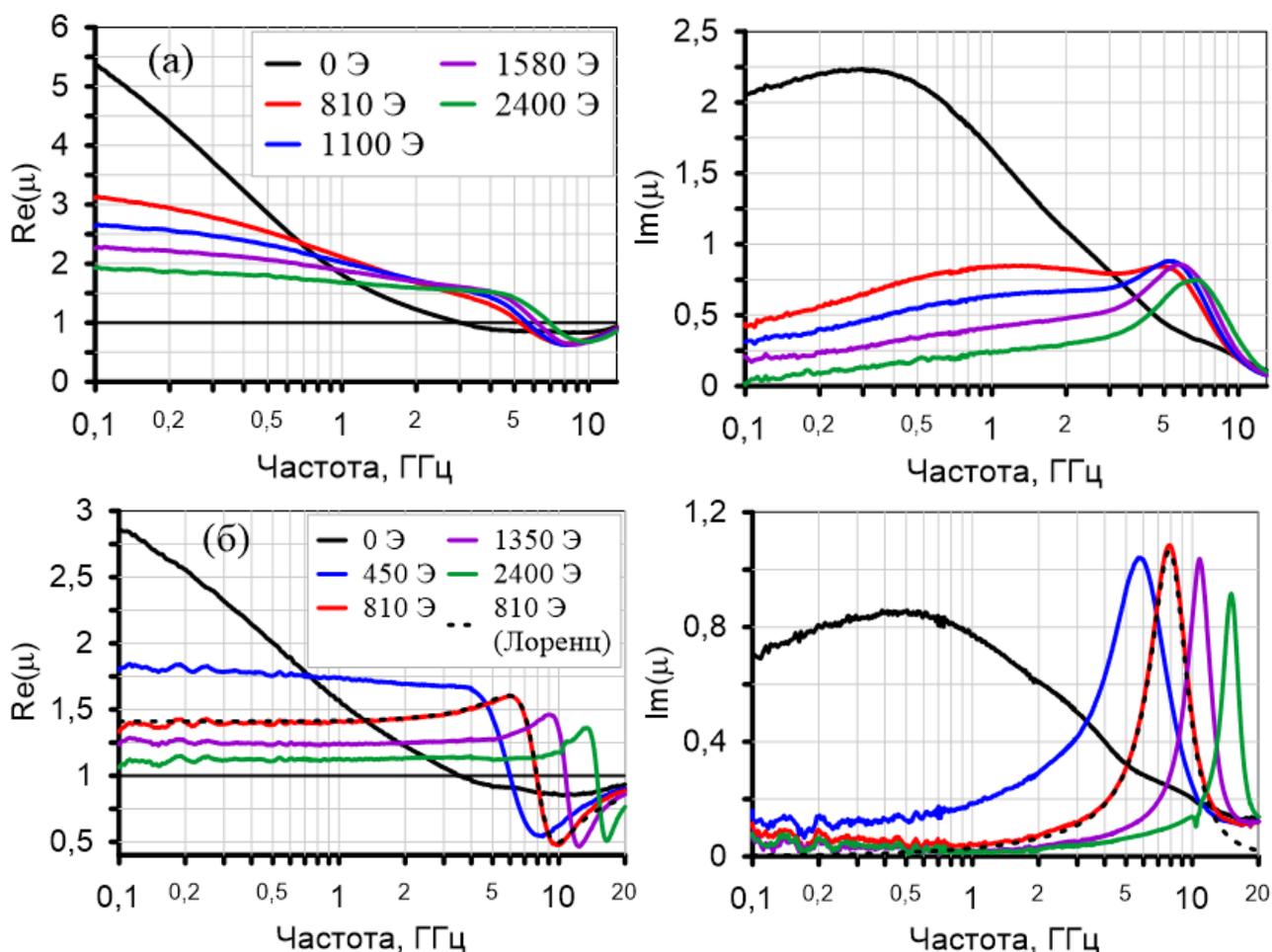


Рисунок 5.15 – Измеренные частотные зависимости магнитной проницаемости первого (а) и второго (б) анизотропных образцов при изменении внешнего магнитного поля от нуля до 2400 Э. Величины внешнего магнитного поля указаны в легенде. Черная пунктирная кривая соответствует аппроксимации дисперсионным законом Лоренца

Стоит отметить, что изготовление композитов с частицами, ориентированными в одном направлении, может служить полезным инструментом для исследования магнитных свойств композитов. Расположение частиц вдоль внешнего магнитного поля убирает расщепление ФМР при намагничивании и позволяет в относительно небольших магнитных полях намагнитить образец до насыщения.

Зависимости магнитного момента образцов от приложенного магнитного поля измерены с помощью вибрационного магнитометра. Результаты измерений изотропного и второго анизотропного образца (частицы ориентированы вдоль поля) показаны на рисунке 5.16 синей и красной кривыми, соответственно.

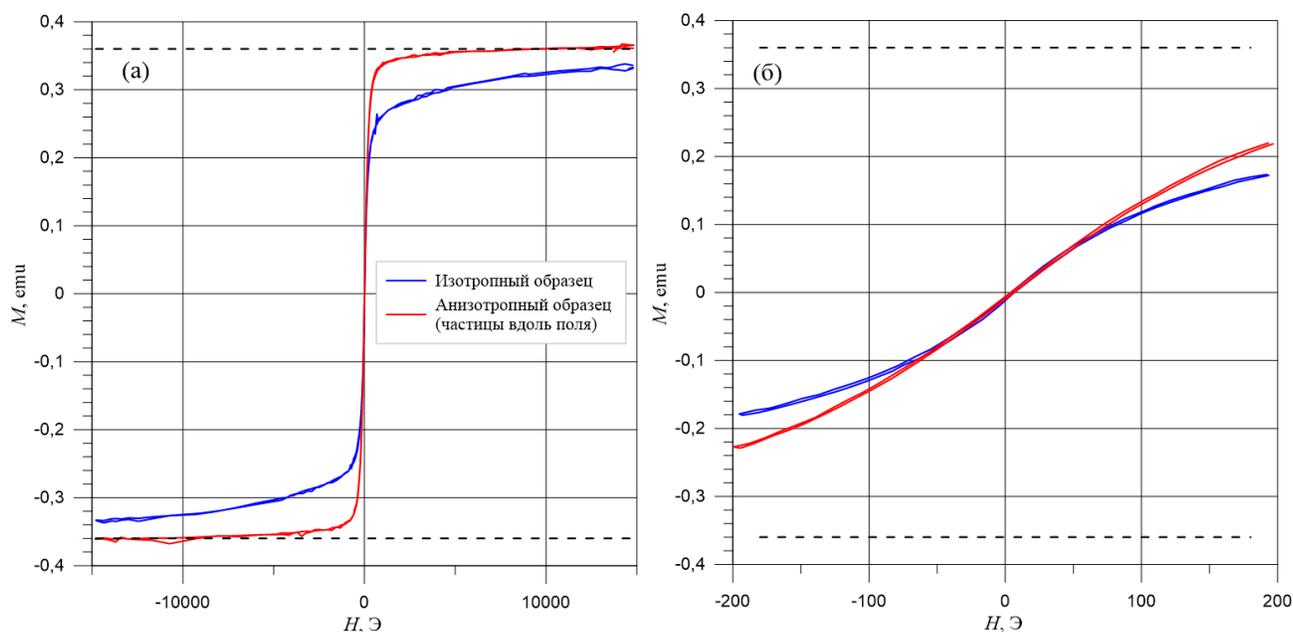


Рисунок 5.16 – Зависимости магнитного момента от приложенного поля, измеренные с помощью вибрационного магнитометра. Синим цветом показаны результаты измерения изотропного образца, красным – результаты измерения анизотропного образца с частицами, ориентированными вдоль магнитного поля. На рисунке (а) диапазон магнитного поля от -15000 Э до 15000 Э, на рисунке (б) – от -1000 Э до 1000 Э

Анизотропный образец намагничивается до насыщения в малых полях, и при дальнейшем увеличении внешнего магнитного поля магнитный момент образца не изменяется. В изотропном образце легче намагничиваются частицы, расположенные вдоль поля, и труднее частицы, расположенные перпендикулярно. Поэтому изотропный образец в поле порядка 1000 Э намагничивается до 70 % от насыщения, затем рост магнитного момента замедляется. На рисунке 5.16 (б) видно, что в малых полях до 80 Э оба образца намагничиваются одинаково. На рисунке 5.16 (а) видна область от 1 до 10 кЭ, в которой магнитный момент изотропного образца растёт медленно.

Частотные зависимости измеренной магнитной проницаемости анизотропных образцов аппроксимированы тремя линиями Лоренца. Амплитуда, частота релаксации и частота резонанса трех лоренцевых пиков, полученных из аппроксимации магнитной проницаемости первого анизотропного образца, показаны на рисунке 5.17. В полях менее 400 Э различные пики слабо различимы,

и параметры дисперсионного закона, найденные из аппроксимации, могут быть некорректны. Найденные пики при приложении поля ведут себя идентично пикам изотропного композита при малом внешнем поле, поведение которых описано в подразделе 5.2. Таким образом, второй и третий пик связаны с модами Полдера–Смита, а третий – с ФМР на однодоменных частицах. Отличие в том, что анизотропный образец намагничивается слабее, и доменная структура исчезает при большем внешнем магнитном поле.

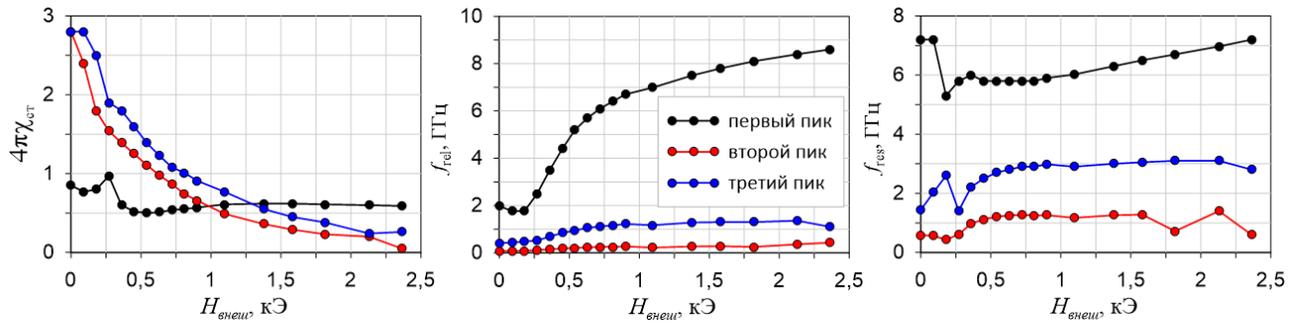


Рисунок 5.17 – Параметры дисперсионного закона Лоренца, полученные из аппроксимации магнитной проницаемости первого анизотропного образца

Амплитуда, частота релаксации и частота резонанса трех лоренцевых пиков, полученных из аппроксимации магнитной проницаемости второго анизотропного образца, показаны на рисунке 5.18. Частоты резонанса пиков, связанных с доменной структурой, имеют величину около несколько сотен ГГц, т.е. пики имеют вид дебаевской релаксации, и не показаны на рисунке 5.18. Доменная структура исчезает при существенно меньшем поле, по сравнению с изотропным образцом, и низкочастотные пики, связанные с модами Полдера–Смита, становятся неразличимы при полях около 500 Э. Первый пик достигает значительно больших значений частот релаксации и резонанса по сравнению с пиком первого анизотропного образца, при этом расщепление пика не происходит.

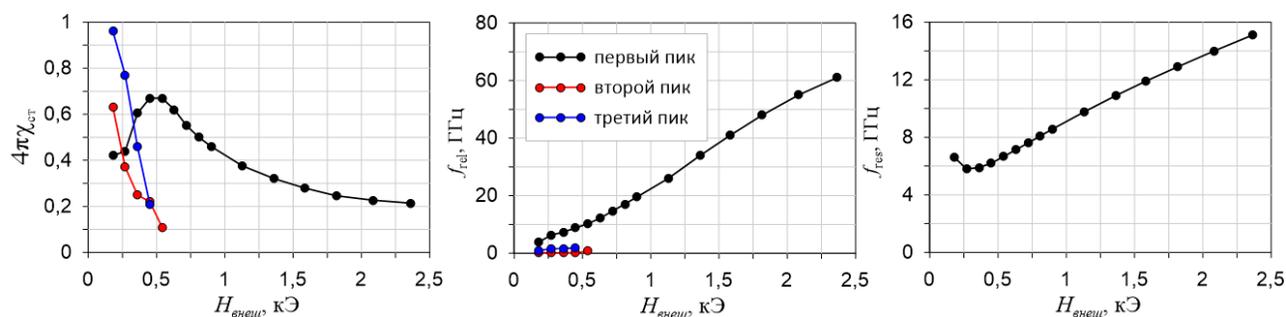


Рисунок 5.18 – Параметры дисперсионного закона Лоренца, полученные из аппроксимации магнитной проницаемости первого анизотропного образца. Точки соответствуют измеренным данным и соединены линиями для наглядности

Таким образом, влияние размагничивающих полей на первый анизотропный образец максимально, а на второй – минимально. В изотропном образце влияние размагничивающих полей различно в зависимости от ориентации того или иного включения. Этот эффект приводит к наблюдаемому расщеплению пика. Частотные зависимости проницаемости изотропного образца аппроксимированы двумя Лоренцевыми кривыми. Зависимости резонансных частот от приложенного поля, полученные в результате этой аппроксимации, показаны на рисунке 5.19 красными и зелеными точками. Зависимости для первого и второго анизотропных образцов также показаны на рисунке 5.19 синими и черными точками, соответственно. Видно, что частоты изотропного образца находятся между частотами анизотропного. Такое поведение связано со случайной ориентацией частиц в изотропном образце.

Второй анизотропный образец легче намагничивается до насыщения, что может быть использовано для определения магнитных характеристик материала. Пик магнитных потерь имеет лоренцеву форму при полях более 800 Э (черные пунктирные кривые на рисунке 5.15(б)). Зависимость частоты резонанса от внешнего поля аппроксимирована законом Киттеля (1.15), из которого найдены намагниченность насыщения и поле анизотропии. Аппроксимация зависимости частоты резонанса второго анизотропного образца от внешнего поля законом Киттеля показана на рисунке 5.19 черной кривой. При малых полях образец не намагничен до насыщения, и наблюдается несоответствие между аппроксимацией

и измеренными данными. Найденная намагниченность насыщения составляет  $4\pi M_0 = 0,9$  Тл и близка к значениям из справочной литературы (1,0 Тл). Хотя частицы в образце упорядочены, поля анизотропии ориентированы случайным образом в плоскости частиц, и среднее значение поля анизотропии близко к нулю. Поэтому найденное значение поля анизотропии (5,8 Э) невелико.

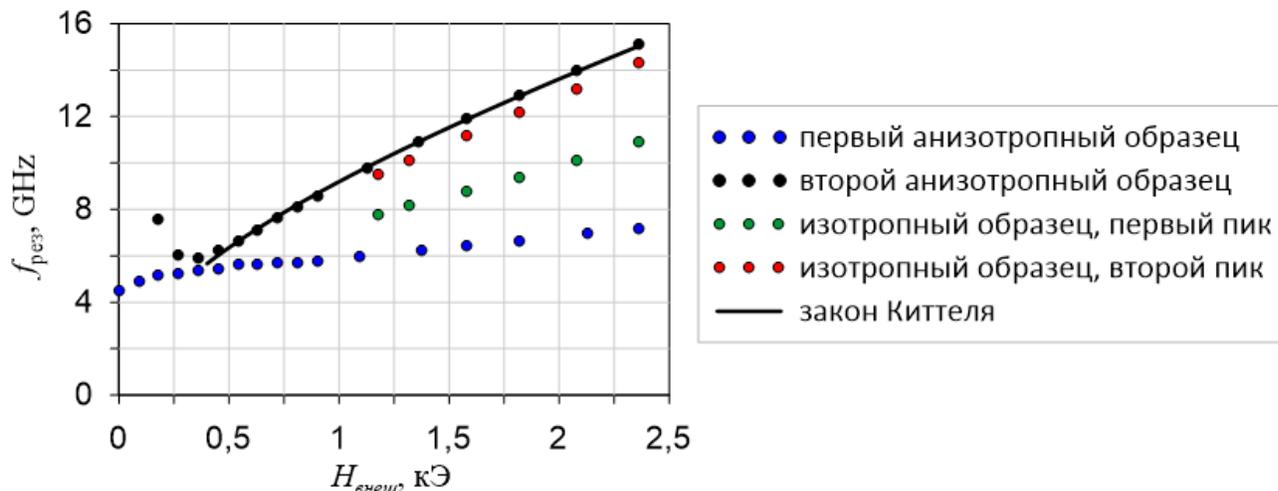


Рисунок 5.19 – Зависимости частоты резонанса от приложенного внешнего магнитного поля. Точки соответствуют измеренным данным, черная сплошная кривая – аппроксимации законом Киттеля. В легенде указаны измеряемые образцы

Таким образом, магнитная проницаемость композитов, наполненных пластинчатыми частицами сендаста, измерена в зависимости от частоты и внешнего магнитного поля. Обнаружено, что пик магнитных потерь расщепляется под действием внешнего магнитного поля более 1,5 кЭ. Для исследования этого эффекта были изготовлены два анизотропных образца с пластинчатыми частицами, ориентированными перпендикулярно и параллельно коаксиальной оси. Пики магнитных потерь анизотропных образцов не расщепляются под действием внешнего поля. Показано, что расщепление пика магнитных потерь изотропного образца вызвано различной ориентацией частиц в образце. С помощью измерений СВЧ магнитной проницаемости анизотропного образца во внешнем магнитном поле определена намагниченность насыщения материала.

## 5.4 Выводы к разделу 5

Разработана методика измерения и анализа магнитной проницаемости композитных материалов в зависимости от частоты и внешнего магнитного поля. Измерения проведены с помощью модифицированного метода Николсона–Росса во внешнем магнитном поле до 2400 Э в диапазоне частот от 0,1 до 20 ГГц. Анализ данных проведен с помощью аппроксимации магнитной проницаемости дисперсионным законом Лоренца, содержащим три лоренцевых члена. С помощью разработанной методики исследованы магнитные свойства композитных материалов с пластинчатыми включениями сендаста в парафиновой матрице.

Впервые экспериментально показано, что формула смещения Винера, корректно восстанавливающая собственную магнитную проницаемость частиц в нулевом внешнем магнитном поле, при приложении поля оказывается неприменима. С помощью анализа измеренных данных определены механизмы, ответственные за возникновение наблюдаемых пиков потерь, и найдены причины некорректности формулы смещения при приложении поля. Показано, что основной пик магнитных потерь связан с уширением ФМР на доменной структуре в частицах (т.н. доменные моды). Доменная структура нивелирует магнитодипольное взаимодействие между близко расположенными частицами, т.к. в этом случае средние магнитные моменты частиц близки к нулю. Увеличение внешнего поля приводит к исчезновению доменной структуры и росту вклада ФМР на однодоменных частицах в магнитные потери. При этом пик ФМР должен подчиняться формулам смещения, учитывающим взаимодействие между включениями.

Показано, что при малой доли включений в образце (менее 7%) внешнее магнитное поле размагничивается на отдельных частицах. Из-за размагничивания на отдельных частицах пик магнитных потерь изотропного образца расщепляется во внешнем магнитном поле. Увеличение доли включений приводит к тому, что

внешнее поле размагничивается на образце как на едином целом, и расщепление пика при приложении поля не происходит. Особенности намагничивания композитов также исследованы на анизотропных образцах. Показано, что в случае анизотропных композитов пик магнитных потерь не расщепляется при приложении внешнего магнитного поля. С помощью измерений СВЧ магнитной проницаемости анизотропного образца во внешнем магнитном поле определена намагниченность насыщения материала наполнителя.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основными результатами диссертационной работы является следующее:

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

2. Учтен 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 смешения 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 ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ**

1. Lagarkov A.N., Rozanov K.N. High-frequency behavior of magnetic composites // J. Magn. Magn. Mater. 2009. Vol. 321. P. 2082.
2. Garner A.L., Parker G.J., Simone D.L. Accounting for conducting inclusion permeability in the microwave regime in a modified generalized effective medium theory // IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul. 2015. Vol. 22. No. 1. PP. 2064-2072.
3. Li Q., Chen Y., Harris V.G. Clustering effect on permeability spectra of magneto-dielectric composites with conductive magnetic inclusions // Journal of Applied Physics. 2019. Vol. 125. P. 185107.
4. Han M., Rozanov K.N., Zezyulina P.A., et al. Effects of eddy current and dispersion of magnetic anisotropy on the high-frequency permeability of Fe-based nanocomposites // J. Magn. Magn. Mater. 2015. Vol. 383. P. 114.
5. Geyer R.G., Asadi-Zeydabadi M. Tailored dielectric and magnetic properties of composite electroceramics with ferroelectric and ferrimagnetic components // J. Appl. Phys. 2018. Vol. 124. P. 164104.

6. Kasagi T., Tsutaoka T., Hatakeyama K. Electromagnetic properties of Permendur granular composite materials containing flaky particles // J. Appl. Phys. 2014. Vol. 116. P. 153901.
7. Polder D., Smit J. Resonance Phenomena in Ferrites // Rev. Mod. Phys. 1953. Vol. 25. P. 89.
8. Smit J., Beljers H.G. Ferromagnetic resonance absorption in BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub> a highly anisotropic crystal // Philips. Res. Rep. 1955. Vol. 10. P. 113.
9. Artman J.O. Ferromagnetic Resonance in Metal Single Crystals // Phys. Rev. 1957. Vol. 105. P. 74.
10. Wu M., Zhang Y.D., Hui S., et al. Microwave magnetic properties of Co<sub>50</sub>/(SiO<sub>2</sub>)<sub>50</sub> nanoparticles // Appl. Phys. Lett. 2002. Vol. 80. P. 4404.
11. Liao S.B. Ferromagnetic Physics // Science, Beijing. 2000. Vol. 3. P. 17.
12. Acher O., Adenot A.L. Bounds on the dynamic properties of magnetic material // Phys. Rev. B. 2000. Vol. 62. P. 11324.
13. Rozanov K.N., Koledintseva M.Y. Proc.IEEE Int. Symp. Electromag.Comp. Denver. Aug. 4–10, 2013. P. 551.
14. Lopusnik R., Nibarger J.P., Silva T.J., Celinski Z. Different dynamic and static magnetic anisotropy in thin Permalloy™ films // Appl. Phys. Lett. 2003. Vol. 83. P. 96.
15. Franco V., Conde A. Magnetic anisotropy obtained from demagnetization curves: Influence of particle orientation and interactions // Appl. Phys. Lett. 1999. Vol. 74. P. 3875.
16. Sihvola A.H. Electromagnetic mixing formulas and applications // IEEE. 1999. P. 284.
17. Ebels U., Wilgen P.E., Ounadjela K. Probing domain wall structures in Co(0001) thin films using ferromagnetic resonance // Europhys. Lett., Vol. 46 (1), 1999. PP. 94 – 100.

18. 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. No. 8. PP. 43-55.
19. Brosseau C. Modelling and simulation of dielectric heterostructures: a physical survey from an historical perspective // J. Phys. D: Appl. Phys. 2006. Vol. 39. No. 7. P. 1277.
20. Bayrakdar H. Complex permittivity, complex permeability and microwave absorption properties of ferrite-paraffin polymer composites // J. Magn. Magn. Mater. 2011. Vol. 323. P. 1882.
21. Ciomaga C.E., Balmus S.B., Dumitru I., et al. Experimental and analytical modeling of resonant permittivity and permeability in ferroelectric-ferrite composites in microwave range // J. Appl. Phys. 2012. Vol. 111. No. 12. P. 124114.
22. Dosoudil R., Franek J., Slama J., et al. Electromagnetic Wave Absorption Performances of Metal Alloy/Spinel Ferrite/Polymer Composites // IEEE Trans. Magn. 2012. Vol. 48. PP. 1524–1527.
23. Han M.G., Liang D.F., Xie J.L., et al. Effect of attrition time on the microwave permeability of magnetic Fe-Si-Al flakes // J. Appl. Phys. 2012. Vol. 111. P. 07A317.
24. He J.H., Wang W., Guan J.G. Internal strain dependence of complex permeability of ball milled carbonyl iron powders in 2–18 GHz // J. Appl. Phys. 2012. Vol. 111. P. 093924.
25. Hotta M., Hayashi M., Nagata. Temperature Measurement of Complex Permittivity and Permeability of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> Powders in the Frequency Range of 0.2 to 13.5 GHz // ISIJ Int. 2011. Vol. 51. PP. 491–497.
26. Koledintseva M.Y., Xu J.F., De S., et al. Systematic Analysis and Engineering of Absorbing Materials Containing Magnetic Inclusions for EMC Applications // IEEE Trans. Magn. 2011. Vol. 47. P. 317.

27. Chalapat K., Timonen J., Huuppola M., et al. Ferromagnetic resonance in epsilon-Co magnetic composites // *Nanotechnology*. 2014. Vol. 25. P. 485707.
28. Rozanov K.N., Li Z., Chen L., al. E. Microwave permeability of Co<sub>2</sub>Z composites // *J. Appl. Phys.* 2005. Vol. 97. No. 1. P. 013905.
29. Starostenko S.N., Rozanov K.N. Microwave Screen with Magnetically Controlled Attenuation // *PIER*. 2009. Vol. 99. P. 405–426.
30. Tsutaoka T., Kinoshita H., Kasagi T., et al. IEEE Int. Sym. on Elec. Com. // Analysis of the permeability spectra of the Fe-Al-Si granular composite materials. 2014. PP. 781–784.
31. Taffary T., Autissier D., Boust F., et al. Ferromagnetic resonance damping in garnets: comparison between saturated and unsaturated states // *IEEE Trans. Magn.* 1998. Vol. 34. PP. 1384–1386.
32. Tsutaoka T. Frequency dispersion of complex permeability in Mn–Zn and Ni–Zn spinel ferrites and their composite materials // *J. Appl. Phys.* 2003. Vol. 93. No. 5. PP. 2789–2796.
33. Aharoni A. Exchange resonance modes in a ferromagnetic sphere // *J. Appl. Phys.* 1991. Vol. 69. No. 11. P. 7762–7764.
34. Lagarkov A.N., Semenenko V.N., Iakubov I.T., et al. High-frequency modes in magnetic spectra of carbonyl iron // *J. Magn. Magn. Mater.* 2012. No. 324. PP. 3402–3405.
35. Zhou P.H., Deng L.J. Multi-Resonance Mechanism Study for Nanocrystalline Iron/Paraffin Composites Based on Exchange Energy and Bounds in Gigahertz // *IEEE Trans. Magn.* 2009. Vol. 45. PP. 663-665.
36. Левин Л. Теория волноводов. Методы решения волноводных задач. М.: Радио и связь, 1981. 312 с.
37. Toneguzzo P., Acher O., Viau G., et al. Observations of exchange resonance modes on submicrometer sized ferromagnetic particles // *J. Appl. Phys.*, Vol. 81 (8), 1997. PP. 5546 – 5548.

38. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Электродинамика сплошных сред. 2-е изд. М.: Наука, 1982. 620 с.
39. Bergman D.J. Dielectric constant of a two-component granular composite: a practical scheme for calculating the pole spectrum // *Phys. Rev. B*. 1979. Vol. 19. P. 2359.
40. Bergman D.J., Dunn K.J. Bulk effective dielectric constant of a composite with a periodic microgeometry // *Phys. Rev. B*. 1992. Vol. 45. P. 13262.
41. Bellegia M., Vokoun D., De Graef M. Demagnetization factors for cylindrical shells and related shapes // *J. Magn. Magn. Mater.* 2009. Vol. 321. No. 9. P. 1306.
42. Bidinosti C.P., Sakamoto Y., Asahi K. General solution of the hollow cylinder and concentric dc surface current // *IEEE Magn. Lett.* 2014. No. 5. P. 04800304.
43. Тикадзуми С. Физика Ферромагнетизма. Магнитные свойства вещества. М.: Мир, 1983. 304 с.
44. Kohmoto O. Ferromagnetic resonance in metal-evaporated video tapes // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1997. Vol. 30. No. 4. P. 546.
45. Barnett S.J., Kenny G.S. Gyromagnetic Ratios of Iron, Cobalt, and Many Binary Alloys of Iron, Cobalt, and Nickel // *Phys. Rev.* 1952. Vol. 87. No. 5. PP. 723–734.
46. Kittel C. Theory of the Dispersion of Magnetic Permeability in Ferromagnetic Materials at Microwave Frequencies // *Phys. Rev.* 1946. Vol. 70. P. 281.
47. Snoek J.L. Dispersion and absorption in magnetic ferrites at frequencies above one Mc/s // *Physica*. 1948. Vol. 14. No. 4. PP. 207-217.
48. Bekker V., Seemann K., Leiste H. Development and Optimisation of Thin Soft Ferromagnetic Fe–Co–Ta–N and Fe–Co–Al–N films Within-Plane Uniaxial Anisotropy for HF Applications // *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 296, 2006. P. 37.
49. Chai G., Yang Y., Zhu J., et al. Adjust the resonance frequency of (Co<sub>90</sub>Nb<sub>10</sub>/Ta)<sub>n</sub> multi-layers from 1.4 to 6.5 GHz by controlling the thickness of Ta interlayers // *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 96, 2010. P. 012505.

50. Нуссенцвейг Х.М. Причинность и дисперсионные соотношения. М.: Мир, 1976. 462 с.
51. Soohoo R.F. Magnetic Thin Films. Harper & Row Publishers, 1965. 259 P.
52. Acher O., Boshier C., LeGuellec P., et al. Investigation of the gyromagnetic permeability of amorphous CoFeNiMoSiB manufactured by different techniques // IEEE Trans. Magn. 1996. Vol. 32. P. 4833.
53. Perrin G., Acher O., Peuzin J.C., et al. Sum rules for gyromagnetic permeability of ferromagnetic thin films: Theoretical and experimental results // J. Magn. Magn. Mater. 1996. Vol. 157-158. PP. 289-290.
54. Walser R.M., Win W., Valanju P.M. Shape-optimized ferromagnetic particles with maximum theoretical microwave susceptibility // IEEE Trans. Magn. 1998. Vol. 34. No. 4. P. 1390.
55. Kraus L., Frait Z., Schneider J. Ferromagnetic resonance in amorphous (FeNi)<sub>80</sub>P<sub>10</sub>B<sub>10</sub> alloys. II. Resonance near the curie temperature // Phys. Stat. Solidi A. 1981. Vol. 64. P. 449.
56. Gilbert T.L. A Lagrangian formulation of the gyromagnetic equation of the magnetic field // Phys. Rev. 1955. Vol. 100. P. 1243.
57. Розанов К.Н. Частотно-зависимые магнитные и диэлектрические свойства композитных материалов для широкополосных СВЧ применений: Дисс. д.ф.-м.н. Москва: ИТПЭ РАН, 2018.
58. Böttcher D., Henk J. Significance of nutation in magnetization dynamics of nanostructures // Phys. Rev. B. 2012. Vol. 86. P. 020404.
59. Ramprasad R., Zurcher P., Petras M., et al. Magnetic properties of metallic ferromagnetic nano-particle composites // J. Appl. Phys. 2004. Vol. 96. No. 11. PP. 519-529.
60. Counil G., Kim J.V., Devolder T., et al. Spin wave contributions to the high-frequency magnetic response of thin films obtained with inductive methods // J. Appl. Phys. 2004. Vol. 95. No. 10. P. 5646–5652.

61. Rantschler J., Ding Y.F., Byeon S.C., et al. Microstructure and Damping in FeTiN and CoFe films // J. Appl. Phys. 2003. Vol. 93. No. 10. P. 6671–6673.
62. Pasquale M., Coisson M., Perero S., et al. Microwave properties and anisotropy field distribution in nanogranular Fe-Co-Al-O films // IEEE Trans. Magn. 2005. Vol. 41. No. 10. P. 3508–3510.
63. Kalarickal S.S., Krivosik P., Wu M.Z., et al. Ferromagnetic resonance linewidth in metallic thin films: Comparison of measurement methods // J. Appl. Phys. 2006. Vol. 99. No. 9. P. 093909.
64. Scheck C., Cheng L., Barsukov I., et al. Low Relaxation Rate in Epitaxial Vanadium-Doped Ultrathin Iron Films // Phys. Rev. Lett. 2007. Vol. 98. P. 117601.
65. Hosono A., Tanabe S. Magnetic properties and domain structures for Sendust and Fe-Zr-N films // IEEE Trans. J. Magn. Jpn. 1993. Vol. 8. PP. 475-482.
66. Nakanishi K., Shimizu O., Yoshida. Frequency dependence of permeability in Fe-Zr-N film; // IEEE Trans. J. Magn. Jpn. 1993. Vol. 8. PP. 340-344.
67. Huijbregtse J., Roozeboom F., Sietsma J., et al. High-frequency permeability of soft-magnetic Fe–Hf–O films with high resistivity // J. Appl. Phys. 1998. Vol. 83. P. 1569.
68. Ранкис Г.Ж. Динамика намагничивания поликристаллических ферритов. Рига: Зинатне, 1981. 187 с.
69. Wu M., Zhang H., Yao X., et al. Microwave characterization of ferrite particles // J. Phys. D.: Appl. Phys. 2001. Vol. 34. No. 6. P. 889.
70. Коуров Д.Н., Коуров Н.И., Тюленев Л.Н. Естественный ферромагнитный резонанс в разупорядоченном сплаве Pd<sub>2</sub>AuFe // ФТТ. 1998. Т. 40(10). С. 1900-1904.
71. Антонов А.С. Магнитоимпеданс ферромагнитных микропроводов, тонких пленок и мультислоев при высоких частотах: дисс. на соиск. уч. ст. д. ф.-м. н. М.: ИВТАН, 2002.

72. Visser E.G., Johnson. A novel interpretation of the complex permeability in polycrystalline ferrites // *J. Magn. Magn. Mater.* 1991. Vol. 101. No. 1-3. PP. 143-147.
73. Buznikov N.A., Rozanov K.N. The effect of stripe domain structure on dynamic permeability of thin ferromagnetic films with out-of-plane uniaxial anisotropy // *J. Magn. Magn. Mater.* 2005. Vol. 285. No. 3. PP. 314–326.
74. Youssef J.B., Vukadinovic N., Billet D., et al. Thickness-dependent magnetic excitations in Permalloy films with nonuniform magnetization // *Phys. Rev. B.* 2004. Vol. 69. P. 174402.
75. Чеченин Н.Г. Влияние внутренних полей рассеяния на высокочастотные свойства магнитных тонких пленок // *ФТТ.* 2004. Т. 46(3). С. 466–470.
76. Nakamura T., Hatakeyama K. Complex permeability of polycrystalline hexagonal ferrites // *IEEE Trans. Magn.* 2000. Vol. 36. No. 5. P. 3415.
77. Nakamura T. Snoek's limit in high-frequency permeability of polycrystalline Ni–Zn, Mg–Zn, and Ni–Zn–Cu spinel ferrites // *J. Appl. Phys.* 2000. Vol. 88. P. 348.
78. Nakamura T., Tsutaoka T., Hatakeyama K. Frequency dispersion of permeability in ferrite composite materials // *J. Magn. Magn. Mater.* 1994. Vol. 138. P. 319.
79. Neo C.P., Yang Y., Ding J. Calculation of complex permeability of magnetic composite materials using ferromagnetic resonance model // *J. Appl. Phys.* 2010. Vol. 107. P. 083906.
80. Бозорт Р. Ферромагнетизм. М.: Изд-во ин. литературы, 1956. 784 с.
81. van de Riet E., Roozeboom F. Ferromagnetic resonance and eddy currents in high-permeable thin films // *J. Appl. Phys.* 1997. Vol. 81. No. 1. PP. 350-354.
82. Rozanov K.N., Koledintseva M.Y. Proc. IEEE Symp. EMC // *Analytical Representations for Frequency Dependences of Microwave Permeability.* Pittsburgh, USA. Aug. 5–10, 2012. P. 422–427. p. 13116484.

83. Qiao L., Wen F.S., Wei J.Q., et al. Microwave permeability spectra of flake-shaped FeCuNbSiB particle composites // J. Appl. Phys. 2008. Vol. 103. P. 063903.
84. Wu L.Z., Ding J., Jiang H.B., et al. High frequency complex permeability of iron particles in a nonmagnetic matrix // J. Appl. Phys. 2006. Vol. 99. P. 083905.
85. Landau L., Lifschitz E. On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies // Phys. Z. Sowjetunion. 1935. Vol. 8. P. 153.
86. Artman J.O., Charap S.H. Ferromagnetic resonance in periodic domain structures // J. Appl. Phys. 1978. Vol. 49. No. 3. PP. 1587-1589.
87. Layadi A., Ciarallo F.W., Artman J.O. Torque, FMR and domain mode FMR relations in thin 'oblique anisotropy axis' films // IEEE Trans. Magn. 1987. Vol. 23. PP. 3642-3644.
88. Vukadinovic N., Le Gall H., Ben Youssef J. Influence of magnetic parameters on microwave absorption of domain mode ferromagnetic resonance // J. Magn. Magn. Mater. 1995. Vol. 150. PP. 213-222.
89. Tsutaoka T., Ono , Tsurunaga A., et al. Proc. 2011 IEEE Int. Sym. EMC // High frequency permeability of Fe-Al-Si granular composite materials. California, USA. 2011. PP. 78-83.
90. Becker R. La dynamique de la precession de bloch et la permeabilite en haute frequence // J. de Phys. et Rad. 1951. Vol. 12. No. 3. PP. 332-338.
91. Rado G.T., Wright R.W., Emerson W.H. Ferromagnetism at Very High Frequencies. III. Two Mechanisms of Dispersion in a Ferrite // Phys. Rev.. 1950. Vol. 80. No. 2. P. 273.
92. Miles P.A., Westphal W.B., Hippel A. Dielectric Spectroscopy of Ferromagnetic Semiconductors // Rev. Mod. Phys. 1957. Vol. 29. No. 3. P. 270.
93. Le Craw R.C., Spencer E.G. Domain Structure Effects in an Anomalous Ferrimagnetic Resonance of Ferrites // J. Appl. Phys. 1957. Vol. 28. No. 4. P. 399.

94. Розанов К., Петров Д., Маратканова А., и др. СВЧ-свойства порошков, приготовленных совместным высокоэнергетическим размолом железа и парафина // Физ. метал. и металловед., Т. 115(7), 2014. С. 682.
95. Bergman D.J., Stroud D. Physical properties of macroscopically inhomogeneous media // Solid State Physics, Vol. 46, 1992. PP. 147–269.
96. Maxwell Garnett. Colours in metal glasses and in metallic films // Philosophical Transactions of the Royal Society, Vol. 203, 1904. PP. 359-371.
97. Bruggeman D.A.G. Berechnung verschiedener physikalischer konstanten von heterogenen substanzen, i. dielektrizitätskonstanten und leitfähigkeiten der mischkörper aus isotropen substanzen // Ann. Phys., 1935. PP. 636-664.
98. Старостенко С., Розанов К., Бобровский С., Ширяев А. Двухкомпонентная гетерогенная система с формированием порога протекания за счет инверсии матричной структуры // Радиотехника и электроника, Т. 65(12), 2020. С. 1190.
99. Wiener O. Die Theorie des Mischkörpers für das Feld der stationären Strömung // Abh.-Sachs. Geselsch. 1912. Vol. 32. PP. 509-604.
100. Han M., Liang D., Rozanov K.N. Microwave permeability and Mössbauer spectra of flaky Fe-Si-Al particles // IEEE Trans. Magn. 2013. Vol. 49. No. 3. PP. 982–985.
101. Acher O., Vermeulen J.L., Jacquart P.M., et al. Permeability measurement on ferromagnetic thin films from 50 MHz up to 18 GHz // J. Magn. Magn. Mater. 1994. No. 136. P. 269.
102. Лагарьков А.Н., Кашуркин О.Ю., Маклаков С.А., Осипов А.В., и др. Влияние магнитоупругого эффекта на СВЧ магнитные свойства тонких пленок Fe-N // Радиотехника и электроника, Т. 4, 2012. С. 441-448.
103. Looyenga H. Dielectric constants of mixtures // Physica, Vol. 31, 1965. PP. 401–406.

104. Osipov A.V., Rozanov K.N., Simonov N.A., et al. Reconstruction of intrinsic parameters of a composite from the measured frequency dependence of permeability // *J. Phys.:Condens.Matter*. 2002. Vol. 14. No. 41. P. 9507.

105. Оделевский В.И. Расчет обобщенной проводимости гетерогенных систем: Дисс. к.ф.-м.н. Москва. 1947. 110 с.

106. Das C.J., Das-Gupta D.K. Inorganic ceramic/polymer ferroelectric composite electrets // *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 3, No. 5, 1996. PP. 706-734.

107. Старостенко С.Н., Розанов К.Н., Лагарьков А.Н. Электрические и магнитные свойства “модели смешения бинарных гетерогенных систем” // *Физ. метал. и металловед.*, Т. 122(4), 2021. С. 347 – 369.

108. Starostenko S.N., Rozanov K.N., Shiryayev 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*, Vol. 76, 2018. PP. 143-155.

109. Schmool D.S., Apolinario A., Casoli F., et al. Ferromagnetic Resonance Study of Fe/FePt Coupled Films With Perpendicular Anisotropy // *IEEE Trans. Magn.* 2008. Vol. 40. P. 3087.

110. Tomita S., Hagiwara M., Kashiwagi T., et al. Ferromagnetic resonance study of diluted Fe nanogranular films // *J. Appl. Phys.* 2004. Vol. 95. P. 8194.

111. Maksymov I.S., Kostylev M. Broadband stripline ferromagnetic resonance spectroscopy of ferromagnetic films, multilayers and nanostructures // *Physica E*. 2015. Vol. 69. P. 253.

112. Shiryayev A.O., Rozanov K.N., Vyzulin S.A., et al. Magnetic resonances and microwave permeability in thin Fe films on flexible polymer substrates // *J. Magn. Magn. Mater.* 2018. No. 461. P. 76.

113. Nicolson A.M., Ross G.F. "Measurement of the intrinsic properties of materials by time domain techniques // IEEE Trans. Instr. Meas. 1970. Vol. 19. No. 4. P. 377.
114. Weir W.R. Automatic Measurement of Complex Dielectric Constant and permeability at Microwave Frequencies // Proc. IEEE. 1974. Vol. 62. No. 1. P. 33.
115. Kim S., Baker-Jarvis J. An Approximate Approach to Determining the Permittivity and Permeability Near  $\lambda/2$  Resonances in Transmission/Reflection Measurements // PIER B, Vol. 58, 2014. PP. 95 – 109.
116. Mason S.J. Feedback Theory – Further Properties of Signal Flow Graphs // Proceedings of the IRE, Vol. 41 (9), 1953.
117. Engen G.F., Hoer C.A. Thru-Reflect-Line: An improved technique for calibrating the dual six-port automatic network analyzer // IEEE Trans. Microw. Theory Techn. 1979. Vol. MTT-27. No. 12. PP. 987-993.
118. Чечерников В.И. Магнитные измерения. Издательство Московского Университета, 1969.
119. Chevalier A., Mattei J.L., Le Floc'h F. Ferromagnetic resonance of isotropic heterogeneous magnetic materials: theory and experiments // J. Magn. Magn. Mater., Vol. 215–216, 2000. PP. 66-68.
120. Mattei J.L., Floc'h M.L. Percolative behaviour and demagnetizing effects in disordered heterostructures // J. Magn. Magn. Mater., Vol. 257, No. 2-3, 2003. PP. 335-345.
121. Anhalt M., Weidenfeller B., Mattei J.L. Inner demagnetizing factor in polymer bouded soft magnetic materials // J. Magn. Magn. Mater., Vol. 320, No. 20, 2007. PP. e844-e848.
122. Rozanov K.N., Osipov A.V., Petrov D.A., et al. Proc. Symp. P: Electromagnetic Materials, ICMAT // Reconstruction of Intrinsic Permeability of Inclusions from the Measured Permeability of a Composite. Singapore. 1–6 July, 2007. PP. 59–66.

123. Olmedo L., Chateau G., Deleuze C., et al. Microwave characterization and modelization of magnetic granular materials // *J. Appl. Phys.* 1993. Vol. 73. No. 10. PP. 6992–6994.
124. Zhang B.Z., Yuan Z., Zhao H., et al. Hysteretic Behavior of the Dynamic Permeability in FeCoB Thin Films // *IEEE Trans. Magn.* 2016. Vol. 52. No. 2. P. 2000204.
125. Brosseau C., Mallégol S., Quéffelec P., et al. Nonreciprocal electromagnetic properties of nanocomposites at microwave frequencies // *Phys. Rev. B.* 2004. Vol. 70. P. 092401.
126. Cao D., Zhu Z., Feng H., et al. Applied magnetic field angle dependence of the static and dynamic magnetic properties in FeCo films during the deposition // *J. Magn. Magn. Mater.* 2016. No. 416. P. 208.
127. Kimura T., Yabukami S., Ozawa T., et al. Permeability Measurements of Magnetic Thin Film with Microstrip Probe // *Journal of the Magnetism Society of Japan*, Vol. 38, No. 3-1, 2014. PP. 87-91.
128. Kusunoki K., Yabukami S., Ozawa T., et al. Permeability Measurements of Very Thin Magnetic Film Using a Flexible Microstrip-Line-Type Probe // *Journal of the Magnetism Society of Japan*, Vol. 39, No. 3, 2015. PP. 111-115.
129. Liu L., Rozanov K.N., Abshinova M. Tunable properties of microwire composites at microwave frequency // *Appl. Phys.* 2013. Vol. 110 A. PP. 275–279.
130. Iakubov I.T., Kashurkin O.Y., Lagarkov A.N., et al. A contribution from the magnetoelastic effect to measured microwave permeability of thin ferromagnetic films // *J. Magn. Magn. Mater.* 2012. No. 324. P. 3385.
131. Maklakov S.S., Naboko A.S., Maklakov S.A., et al. Amorphization of thin supermalloy films Ni<sub>79</sub>Fe<sub>17</sub>Mo<sub>4</sub> with oxygen during magnetron sputtering // *Journal of Alloys and Compounds.* 2021. No. 854. P. 157097.
132. McLyman W.T. Transformer and inductor design handbook. 3rd ed. New York: Marcel Dekker, 2004. 533 P.

133. Costa A.T., Muniz R.B., Mills D.I. Ferromagnetic resonance linewidths in ultrathin structures: A theoretical study of spin pumping // *Phys. Rev. B*. 2006. No. 73. P. 054426.
134. Barandiaran J.M., Vazquez, Hernando A., et al. Distribution of the magnetic anisotropy in amorphous alloys ribbons // *IEEE Trans. Magn.* 1989. Vol. 25. No. 5. PP. 3330–3332.
135. Rozanov K.N., Koledintseva M.Y., Drewniak J.L. A mixing rule for predicting frequency dependence of material parameters in magnetic composites // *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 324, No. 6, 2012. PP. 1063-1066.
136. Rozanov K.N., Osipov A.V., Petrov D.A., et. al. The effect of shape distribution of inclusions on the frequency dependence of permeability in composites // *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 321, No. 7, 2009. PP. 738-741.
137. Petrov D.A., Rozanov K.N., Koledintseva M.Y. Influence of Higher-order Modes in Coaxial Waveguide on Measurements of Material Parameters // 2018 IEEE Symposium on Electromagnetic Compatibility, Signal Integrity and Power Integrity (EMC, SI & PI), 2018. PP. 66-70.
138. Rozanov K.N., Koledintseva M.Y. Application of generalized Snoek's law over a finite frequency range: A case study // *J. Appl. Phys.* 2016. Vol. 119. P. 073901.
139. Вонсовский С.В. Современное учение о магнетизме. М.: Гостехиздат, 1952. 440 с.
140. Starostenko S.N., Rozanov K.N., Shiryaev A.O., Lagarkov A.N., Shalygin A.N. Determination of sendust intrinsic permeability from microwave constitutive parameters of composites with sendust spheres and flakes // *J. Appl. Phys.*, Vol. 121, 2017. P. 245107.