

Poznań, 8.05. 2023r.

**Recenzja pracy doktorskiej Pana mgr. Sukanta Kumar Jena  
pt. „Magnetic properties of asymmetric layered heavy  
metal/ferromagnet system”**

Rozprawa doktorska mgr. Sukanta Kumar Jena wykonana została Instytucie Fizyki Polskiej Akademii Nauk w Warszawie pod kierunkiem prof. dr hab. Andrzeja Wawro, któremu jako promotor pomocniczy służyła dr Ewelina Milińska. W dalszym toku mojej recenzji pozwolę sobie nazywać Pana Sukanta Kumar Jena Kandydatem ze względów czysto stylistycznych związanych z trudnością w odmianie Jego nazwiska w języku polskim.

Zgodnie z tytułem rozprawy, dotyczy ona zbadaniu właściwości magnetycznych cienkowarstwowych struktur bazujących na asymetrycznych sekwencjach cienkich warstw ferromagnetyka (Co) w kontakcie z warstwami metali ciężkich – wolframu (W) i platyny (Pt). Tak więc, sekwencje W/Co/Pt o grubościach rzędu kilku do kilkudziesięciu angstrémów ( $\text{\AA}$ ) i o repetycjach  $n$  tych sekwencji zawartych w przedziale od 1 do 20 stanowią obiekt, które są przedmiotem badań Kandydata. Magnetyczne struktury warstwowe są przedmiotem intensywnych badań od około 30 lat a najbardziej spektakularnym rezultatem tych badań było odkrycie gigantycznego magnetoporu (GMR) wynikającego z antyrównoległego uporządkowania magnetycznego w subwarstwach ferromagnetycznych rozdzielonych „przekładkami” – warstwami metali nieferromagnetycznych. Innym znaczącym osiągnięciem badań na tym polu było zaobserwowanie anizotropii prostopadłej w strukturach wielowarstwowych Au/Co/Au i objaśnienie tego efektu (model Bruno i eksperymenty z udziałem rentgenowskiego dichroizmu kołowego XMCD) jako rezultatu oddziaływania spin-orbita w strukturach zawierających interfejsy ze złamaną symetrią sieci krystalicznej. W tym kontekście, naturalnym rozwinięciem badań nad strukturami wielowarstwowymi wydaje się być sprawdzenie w jaki sposób struktury „asymetryczne” zawierające różne metale ciężkie (np. W/Co/Pt) modyfikują ich efektywne (tj. globalne) właściwości magnetyczne związane z anizotropią

prostopadłą (PMA). Istotnym, dodatkowym efektem takiej asymetrycznej konfiguracji jest oddziaływanie Dzialoshynskii-Moriya (DMI), które modyfikuje strukturę spinową tych struktur, prowadząc do powstania skyrmionów.

Mgr Sukanta Kumar Jena jest współautorem dwóch prac opublikowanych w recenzowanych czasopismach: *Nanoscale* (jako pierwszy współautor) oraz *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*- jako drugi współautor. W pierwszej publikacji Kandydat był w sposób kluczowy zaangażowany w: wytworzeniu próbek, pomiarach MFM i analizie wyników, analizie wyników SQID, wyznaczeniu  $D_{\text{eff}}$  z danych pomiarowych anizotropii efektywnej  $K_{\text{ef}}$  oraz w przygotowaniu wstępnej wersji manuskryptu. W drugiej publikacji Kandydat określił swój wkład jako badania – investigation. Rozumiem, że Kandydat wykonał podstawowe badania magnetyczne niezbędne do określenia uporządkowania magnetycznego struktur Pt/W/Co/Pt. Pozostałe osiągnięcia Kandydata to: uzyskanie stypendium doktorskiego w projekcie Bethoven, zdobycie finansowania z IEEE Magnetic Society, udział w pięciu prezentacjach posterowych oraz pięciu prezentacjach ustnych w szeregu konferencji krajowych i międzynarodowych i wygłoszenie dwóch seminariów w IF PAN oraz na Uniwersytecie w Białymstoku.

Rozprawa doktorska zredagowana w języku angielskim jest zawarta w 113. stronach i składa się z sześciu rozdziałów. Oprócz zwyczajowych informacji bibliograficznych dotyczących Kandydata, podziękowań i wstępu, rozprawa składa się z dwóch części. Pierwsza – opisuje podstawy teoretyczne magnetyzmu oraz techniki eksperymentalne zastosowane w badaniach (rozdziały 2 i 3). Druga – obejmująca rozdziały 4, 5 i 6 – bezpośrednio dotyczy wyników badań asymetrycznych struktur cienkowarstwowych W/Co/Pt i kończy się zwięzłym podsumowaniem. Struktura tej rozprawy doktorskiej jest więc typowa dla prac przedstawiających rezultaty badań eksperymentalnych z fizyki.

We wstępie rozprawy zawarte są podstawowe wiadomości dotyczące złożoności oddziaływań w metalicznych strukturach wielowarstwowych i możliwości ich modyfikacji poprzez zmianę grubości poszczególnych subwarstw, zmianę ich sekwencji oraz liczby repetycji podstawowych elementów strukturalnych, jakimi są ultracienkie epitaksjalne trójwarstwy W/Co/Pt. Są to więc głównie modyfikacje geometryczne wynikające z zastosowanej technologii – epitaksji z wiązek molekularnych (MBE). Jak podkreśla Kandydat, technologia ta umożliwiła w efekcie uzyskanie struktur o jakości nieosiągalnej do uzyskania ultracienkich warstw przy

pomocy innych metod nanoszenia. Oddziaływania będące przedmiotem zainteresowania w tej rozprawie to przede wszystkim oddziaływanie DMI towarzyszące anizotropii prostopadłej, sprzężenie międzywarstwowe, czy wreszcie oddziaływania magnetostatyczne w przypadku struktur ze znaczną liczbą repetycji trójwarstw W/Co/Pt. Oddziaływania te (z istotnym udziałem DMI) prowadzą do wytworzenia specyficznej struktury domenowej ewoluującej do sieci skyrmionów.

Charakterystyczną cechą omówionego pokrótce wstępu jest oświadczenie o roli Kandydata w pracach związanych z realizacją Jego przewodu doktorskiego. Zamiast zwyczajowych oświadczeń współautorów publikacji, Kandydat osobiście przedstawił swój udział w poszczególnych badaniach. Uważam, że takie podejście jest równoprawne a ewentualne komentarze mogą pojawić się w czasie publicznej obrony rozprawy doktorskiej.

Rozdział 2 zawiera skondensowane, podręcznikowe informacje na temat podstawowych zjawisk związanych z ferromagnetyzmem ze szczególnym uwzględnieniem anizotropii cienkich warstw, oddziaływania DMI oraz struktury domenowej. W większości prac doktorskich z dziedziny magnetyzmu autorzy zwyczajowo zamieszczają rozdział poświęcony podstawom teoretycznym. Sądzę, że równie dobrze ten rozdział mógłby być pominięty, tym bardziej że w dzisiejszych czasach podstawowe informacje można znaleźć w Internecie. Kandydat podążył zwyczajową ścieżką lecz nie ustrzegł się od błędu. Otóż na stronie 30-tej w ostatnim zdaniu stwierdził, że dla cienkich warstw z anizotropią prostopadłą współczynniki odmagnesowania  $N_x=N_y=0$  a  $N_z=1$ . Takie wartości współczynników odmagnesowania obowiązują dla wszystkich cienkich warstw magnetycznych i anizotropia prostopadła nie ma z tym żadnego związku.

W rozdziale trzecim rozprawy opisano techniki eksperymentalne, którymi posługiwał się Kandydat w badaniach epitaksjalnych struktur W/Co/Pt. Najbardziej szczegółowo przedstawiono proces nanoszenia próbek przy pomocy techniki nanoszenia z wiązek molekularnych (MBE) epitaksjalnych struktur warstwowych, których wysoka jakość struktury krystalicznej oraz niska szorstkość interfejsów ma istotne znaczenie na powtarzalność wyników i wielkości niektórych parametrów wyznaczanych w eksperymencie. Zastanawiający jest brak opisu techniki szerokopasmowego rezonansu ferromagnetycznego (VNA-FMR), o której Kandydat parokrotnie wspomina we fragmencie dotyczącym grantów, wizyt naukowych i wystąpieniach konferencyjnych. Ponieważ w dalszych fragmentach tekstu rozprawy

nie ma również żadnej informacji o uzyskanych rezultatach pomiarów VNA-FMR, wnioskuję że wyniki tych badań były albo mało istotne, albo nie zostały one bardziej wnikliwie opracowane. Dlatego prosiłbym Kandydata o komentarz na ten temat w czasie publicznej obrony.

W rozdziale czwartym opisano strukturę krystalograficzną wytworzonych układów wielowarstwowych, właściwości magnetycznych warstwy Co w wybranych typach heterostruktur, wpływ kontaktu z warstwami wolframu (W) lub Pt na magnetyzm Co oraz wpływ grubości warstw W na magnetyzm Co. Od lat 90-tych ubiegłego wieku wiadomo, że cienkie warstwy Co o grubości poniżej  $\sim 18$  Å w kontakcie ze złotem (Au) wykazują anizotropię prostopadłą (PMA). Dla  $d_{Co} > 18$  Å anizotropia jest już typu in-plane i takie przejście pomiędzy tymi typami uporządkowania namagnesowania określa się terminem spin reorientation transition (SRT). SRT zależy od rodzaju metalu ciężkiego. Na przykład dla struktury Pt/Co/Pt SRT występuje przy  $d_{Co} = 22$  Å, a dla struktury Mo/Co/M brak SRT i anizotropia jest typu płaszczyzna łatwa.

Ponieważ Mo i W mają strukturę bcc oraz podobne stałe sieciowe, Kandydat postanowił zbadać w jaki sposób anizotropia prostopadła realizuje się w strukturach typu W/Co/Pt, w których kontakt z Pt sprzyja wystąpieniu PMA, natomiast kontakt z W powinien (podobnie jak z Mo) prowadzić do braku PMA. Kandydat przebadał cały szereg struktur typu W/Co/Pt w różnych konfiguracjach i doszedł do interesujących konkluzji świadczących o tym, że struktury W/Co/Pt w istotny sposób różnią się od struktur Mo/Co/Pt. W szczególności doszedł On do wniosku, że rodzaj warstwy buforowej (Pt lub W) decyduje o pojawieniu PMA lub jej braku w pewnym zakresie grubości Co (rys. 4.2). Aby dokładniej zbadać wpływ warstwy buforowej, obserwowano zmiany strukturalne, których doznaje ta warstwa w miarę jej wzrostu na cienkiej warstwie Pt o grubości 400 Å. W tym celu zastosowano techniki RHEED, TEM i AFM. Głównym rezultatem tych badań było wykazanie, że warstwa W (dla  $d_W < 5$  Å) wzrasta pseudomorficznie w strukturze fcc a następnie epitaksjalnie w strukturze bcc tworząc kryształy zorientowane w trzech kierunkach względem głównych kierunków krystalograficznych płaszczyzny (111) Pt. Zbadano również wpływ grubości W na anizotropię prostopadłą Co w strukturach Pt/W ( $d_W$ )/Co( $d_{Co}$ )/Pt(40 Å). Rezultaty tych badań zestawiono na rys.4.6, który w bardzo czytelny sposób pokazuje, że zakres  $d_{Co}$  występowania PMA jest niezależny od grubości W i ulega równomiernemu przesunięciu w stronę wyższych wartości  $d_{Co}$  ze

wzrostem grubości  $W$ . W szczególności (rys. 4.6 b) wizualizuje w spektakularny sposób mapę różnych stanów (konfiguracji) magnetycznych realizujących się w całym badanym zakresie  $d_{Co}$  versus  $d_W$ . Ten rezultat uważam za szczególnie ważny element rozprawy doktorskiej, tym bardziej że wymagał zapewne wielu żmudnych pomiarów.

W dalszym ciągu rozdziału 4 Kandydat omówił wyniki pomiarów pola anizotropii oraz przedyskutował wpływ asymetrycznych interfejsów  $W/Co$  i  $Co/Pt$  na grubość  $d_0$  tzw. warstwy martwej. Interesującym i nieoczekiwanym dla mnie wynikiem jest wystąpienie ujemnej wartości  $d_0$  dla małych grubości  $d_W < 20 \text{ \AA}$  w układzie  $Pt/W(d_W)/Co(18 \text{ \AA})/Pt$ . Okazuje się, że wynika to z dwóch przeciwstawnych efektów: polaryzacji atomów  $Pt$  na interfejsie  $Co/Pt$  powodującej wzrost efektywnego momentu magnetycznego oraz wygaszaniu momentu magnetycznego na interfejsie  $W/Co$ . Rezultatem tych przeciwstawnych efektów jest niemonotoniczny charakter zależności  $d_0$  vs.  $d_W$  (rys 4.9 b). Zależność ta wymagałaby bardziej wnikliwego omówienia. W szczególności, wyjaśnienie dlaczego efekty te kompensują się (dając  $d_0=0$ ) przy  $d_W=40 \text{ \AA}$ , może się przyczynić do stworzenia modelu struktury interfejsów  $W/Co$  oraz  $Co/Pt$ .

Dyskusja struktury domenowej struktur  $W/Co/Pt$  ma charakter opisowy i nie czuję się kompetentnym do oceny tej dyskusji. Najistotniejszym rezultatem tej części rozprawy jest zaobserwowanie drobnej struktury – magnetic skyrmion bubbles – realizacja której przypisana jest obecności znacznego oddziaływania  $iDMI$  na interfejsach. Kandydat wyznaczył wartość stałej oddziaływania  $D-M$ :  $D=-1.12 \text{ mJ/m}^2$  przy pomocy spektroskopii Brillouin`a.

Podsumowując, rozdział 4 dostarcza szeregu interesujących rezultatów na temat anizotropii oraz oddziaływań magnetycznych asymetrycznych struktur  $W/Co/Pt$  ze szczególnym uwzględnieniem anizotropii prostopadłej, nietypowego charakteru tzw. warstwy martwej, ewolucji struktury domenowej i oraz interfejsowemu oddziaływaniu  $D-M$ . Niestety, „narracyjny” styl tego rozdziału utrudnił mi uzyskanie całościowego obrazu zjawisk odpowiedzialnych za obserwowane efekty. Również niektóre mało czytelne rysunki sprawiają czytelnikowi trudności.

Rozdział piąty dotyczy badań procesów przemagnesowania pojedynczych warstw  $W/Co/Pt$  oraz bardziej złożonych struktur składających się z 6,7 oraz 10 powtórzeń bloków  $W/Co/Pt$ . Dla pojedynczych struktur  $W/Co/Pt$ , na podstawie lokalnych pomiarów pętli kerrowskich w specjalnie przygotowanych próbkach z

ortogonalnymi klinami W (0-20 Å) oraz Pt (0-19 Å) nanoszonymi w postaci sekwencyjnych stopni możliwe było zobrazowanie zmian kształtu pętli histerezy w postaci dwuwymiarowej mapy. Takie umiejętne połączenie wyrafinowanej technologii struktur epitaksjalnych oraz lokalnych pomiarów PMOKE zasługuje na uwagę. Głównym wynikiem tych badań było zaobserwowanie międzywarstwowego antyferromagnetycznego sprzężenia wymiennego dla pewnego zakresu grubości subwarstw W+Pt oraz wyznaczenie wielkości tego sprzężenia (rys. 5.4). Powyższe wyniki oceniam wysoko pomimo braku szczegółowej dyskusji charakteru zależności tego sprzężenia od grubości  $d_{W+PT}$ .

Procesy przemagnesowania w strukturach wielokrotnych są bardziej skomplikowane ze względu na interakcję oddziaływania typu RKKY (prowadzące do wymiennego sprzężenia między warstwowego), oddziaływania dipolowego oraz obecności iDMI. Ciekawa jest dyskusja procesów przemagnesowania w tych strukturach. Ze względu na międzywarstwowe sprzężenie antyferromagnetyczne układy te zachowują się jak skompensowane (dla parzystych powtórzeń) lub nieskompensowane (dla nieparzystych) sztuczne antyferromagnetyki przemagnesowujące się sekwencyjnie. Struktura domenowa w stanie remanencji potwierdza ten globalny, antyferromagnetyczny charakter uporządkowania magnetycznego. Wreszcie dla struktur z najgrubszymi przekładkami W+Pt = 20 Å, dla których międzywarstwowe sprzężenie wymienne jest silnie zredukowane, wzrasta rola oddziaływań dipolowych, które przejawiają się specyficznym kształtem pętli histerezy (rys. 5.7) oraz labiryntową strukturą domenową w stanie remanencji (rys. 5.8).

W rozdziale szóstym przedstawiono wyniki badań procesów przemagnesowania, szczegółowo scharakteryzowano strukturę domenową warstw  $[W(10 \text{ Å})/Co(6 \text{ Å})/Pt(10 \text{ Å})]_N$  z liczbą powtórzeń  $N=10$  i  $20$ . W takich układach wielowarstwowych mamy do czynienia z zarówno z silnym oddziaływaniem dipolowym, jak również ze znacznym iDMI, natomiast wymienne sprzężenie między warstwowo jest zredukowane. Na podstawie zaobserwowanej labiryntowej lub paskowej struktury domenowej oraz tzw. procedury  $K_{eff}$  zaadaptowanej z literatury (Legrand et al.) oszacowano wartość stałej oddziaływania D-M:  $D=2.65 \text{ mJ/m}^2$ . Tę wysoką wartość potwierdzono wynikami symulacji mikromagnetycznych oraz skonfrontowano z numerycznymi obliczeniami z pierwszych zasad (DFT). W dyskusji skomentowano wysoką wartość parametru D jako wynikającą z perfekcyjnej struktury

interfejsów W/Co/Pt o niskiej szorstkości, która jest nieosiągalna dla podobnych warstw nanoszonych przy pomocy rozpylania jonowego.

Przedstawiona do recenzji praca doktorska Kandydata, pomimo uwag krytycznych dotyczących głównie sposobu redakcji tekstu i drobnych niedoskonałości w sposobie przedstawienia poszczególnych zagadnień, reprezentuje wartościowy wkład do interesującego z punktu widzenia mechanizmów oddziaływań magnetycznych fragmentu wiedzy o złożonych, magnetycznych strukturach cienkowarstwowych. Autor przeanalizował szczegółowo warunki prowadzące do powstawania całego spektrum konfiguracji namagnesowania wynikającego ze znacznego udziału oddziaływania typu Dzialoshynskii-Moriya i do realizacji specyficznej struktury domenowej, w tym sieci skyrmionów. Podsumowując, pragnę stwierdzić, że recenzowana rozprawa doktorska spełnia wymogi Ustawy o Stopniach i Tytule Naukowym i wnoszę o dopuszczenie mgr. Sukanta Kumar Jena do dalszych etapów przewodu doktorskiego.

Janusz Dubowik

Poznań, 8.05.2023

