

## **Recenzja**

pracy doktorskiej M. Sc. Sukanta Kumar Jena

### **Magnetic properties of asymmetric layered heavy metal/ferromagnet systems**

Promotor: prof. dr hab. Andrzej Wawro

Promotor pomocniczy: dr Ewelina Milińska

Recenzja pracy doktorskiej o ww. tytule w dziedzinie nauk ścisłych i przyrodniczych w dyscyplinie nauki fizyczne została opracowana na podstawie uchwały Rady Naukowej Instytutu Fizyki PAN z dnia 30. 03. 2023 r.

### **Wybór tematu pracy i jej cele**

Praca doktorska M.Sc. Sukanty Kumara Jena dotyczy badań eksperymentalnych cienkowarstwowych hybrydowych układów metal ciężki (HM) ferromagnetyk (FM). Problematyka ta jest ważnym zagadnieniem elektroniki spinowej ze względu na możliwości opracowania nowych, energooszczędnych technologii przechowywania i przetwarzania informacji w oparciu o bezstratny prąd spinowy, dlatego tematyka ta wpisuje się w trend tzw. green IT.

Metale ciężkie wykazujące silne sprzężenie spinowo-orbitalne, takie jak Pt i W, są badane głównie w dwóch kierunkach: pod kątem efektywności generowania prądu spinowego w wyniku spinowego efektu Halla i wykorzystania ich jako źródła prądu spinowego oraz w kierunku asymetrycznego magnetycznego oddziaływania Dzyaloshinskii-Moriya (DMI) charakteryzującego się skyrmionową teksturą spinową. Pierwszy kierunek wymaga wytwarzania nanorozmiarowych elementów spintronicznych i jest ukierunkowany aplikacyjnie, na przykład na projektowanie i badanie pamięci swobodnego dostępu SOT-MRAM (Spin-Orbit Torque Magnetoresistive Random Access Memory), natomiast drugi, na obecnym etapie, ma charakter badań podstawowych nad magnetyczną teksturą spinową w wyniku interfejsowych oddziaływań wymiennych typu DMI i anizotropii magnetycznej.

Rozprawa doktorska Sukanta Kumara Jena dyskutuje wyniki badań asymetrycznych wielowarstw W/Co/Pt nanoszonych metodą MBE (Molecular Beam Epitaxy). Asymetryczne otoczenie ferromagnetycznej warstwy (Co) warstwami metali ciężkich (W i Pt), charakteryzujących się silnym sprzężeniem spinowo-orbitalnym, o przeciwnych znakach oddziaływania, indukuje interfejsowe oddziaływanie DMI, które znacząco modyfikuje strukturę spinową układów warstw magnetycznych, prowadzące do powstania skyrmionowych spirali spinowych.

W przeciwieństwie, do obszernie dyskutowanych w literaturze, układów nanoszonych techniką magnetronowego rozpylenia, technika MBE zapewnia dobrze zdefiniowaną strukturę krystaliczną warstw składowych oraz wysokiej jakości interfejsy, które są kluczowe dla obserwowanych zjawisk. Właśnie tak eksperymentalnie postawiony cel badań wykazania istotnego znaczenia wkładów

interfejsowych do oddziaływania DMI jest podstawowym celem badań przedstawionych w dysertacji doktorskiej Sukanty Kumara Jena.

## Treść pracy i uwagi ogólne

Przedstawiona rozprawa doktorska liczy 113 stron, napisana jest w języku angielskim, została podzielona na 6 podstawowych rozdziałów poprzedzonych streszczeniami w języku polskim i angielskim, spisem najczęściej zastosowanych symboli i skrótów oraz dorobkiem naukowym doktoranta. Rozdział 1. *Introduction* wprowadza w treść pracy doktorskiej, doktorant uzasadnia nowości naukowe prowadzonych badań w odniesieniu do obecnego stanu wiedzy, definiuje podstawowe cele jakie sobie postawił. Rozdział 2 *Theoretical review* jest krótki zawiera bardzo podstawowe, ogólne, powszechnie znane, podręcznikowe wiadomości z magnetyzmu cienkich warstw. Rozczarowuje podrozdział 2.7 *Dzyaloshinskii-Moriya Interaction (DMI)*, w którym autor nie omawia stanu wiedzy (*state of art*) opublikowanych modeli teoretycznych interfejsowego oddziaływania iDMI, w nawiązaniu do własnych wyników opisanych w rozdziale 6. *Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in the epitaxial W/Co/Pt*.

Rozdział 3. *Experimental techniques* jest dobrze zredagowany omawia technologie nanoszenia warstw metodą MBE oraz zastosowane metody charakteryzacji strukturalnej i magnetycznej. Do udowodnienia i osiągnięcia założonych celów doktorant prawidłowo wybrał metody badawcze, wykazując dużą łatwość a zarazem sprawność w posługiwaniu technikami nanoszenia i charakteryzacji wytworzonych próbek. Doktorant stosował do kontroli wzrostu epitaksjalnego w czasie nanoszenia metodę RHEED (3.4. *Reflection High Energy Electron Diffraction*), ex-situ metody dyfrakcji rentgenowskiej (rozdział 3.5. *XRD*) i niskokątowej XRR (3.5. *X-Ray Reflectivity*). Właściwości magnetyczne, pętle histerezy M(H) lokalnie mierzył za pomocą magnetoptycznego efektu Kerra (rozdział 3.6. *MOKE*), namagnesowanie nasycenia oceniał z pomiarów (3.8. *SQUID*), zmiany struktury domenowej w stanie remanencji (ze względu na konieczność stosowania wysokorozdzielczej techniki mniejszej niż 1  $\mu\text{m}$ ) badał mikroskopem sił magnetycznych (3.7. *MFM*), dynamikę namagnesowania i siłę oddziaływania DMI badał spektroskopią BLS (3.10:- *Brillouin light scattering spectroscopy*). W podrozdziale 3.1. *Molecular Beam Epitaxy technique*, również w rozdziałach dotyczących charakterystyki strukturalnej wytworzonych próbek, brak mi dyskusji o ważnej roli warstwy *seed*, inicjującej wzrost kompletnej próbki, dlaczego stosował warstwę Pt 10 nm lub 40 nm jaki to miało wpływ?, na właściwości monokrystaliczne i jakość interfejsów.

W kolejnych rozdziałach od 4. do 6. doktorant analizuje wyniki badań, które wcześniej zostały opublikowane w dwóch pracach:

- Sukanta Kumar Jena et al. *Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in epitaxial W/Co/Pt multilayers* Nanoscale 13 (16), 7685-7693, 2021
- Zbigniew Kurant, Sukanta Kumar Jena et al. *Magnetic ordering in epitaxial ultrathin Pt/W/Co/Pt layers* Journal of Magnetism and Magnetic Materials 558, 169485, 2022.

Jak wynika z oświadczenia doktoranta w obu publikacjach był on podstawowym eksperymentatorem w zakresie nanoszenia próbek, przeprowadzeniu większości pomiarów. Z kolei największe zaangażowanie (co wynika z Jego oświadczenia) wniósł w opracowanie publikacji w Nanoscale (2021) dotyczącej podstawowej tezy dysertacji - interfejsowego oddziaływania iDMI w układach wielowarstwowych  $[\text{W/Co/Pt}]_N$  ( $N=10$  i  $20$ ).

Aby zrealizować założony cel - badania nad oddziaływania DMI, które indukuje stabilną topologicznie strukturę skyrmionową w epitaksjalnych strukturach W/Co/Pt, doktorant wytwarzał i systematycznie badał najróżniejsze kombinacje zestawień warstw HM/FM gwarantujących prostopadłą anizotropie magnetyczną (PMA) oraz wysoką wartość efektywnej stałej DMI ( $D_{\text{eff}} > 2 \text{ mJ/m}^2$ ).

W rozdziale 4. *Structural and magnetic properties of single and multilayers W/Co/Pt heterostructures* M.Sc. Jena rozpoczyna badania od kontroli jakości epitaksjalnego wzrostu metodą RHEED warstw W i Co o zmiennej grubości osadzanych na podłożu  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (0001)/buforze Pt 40 nm. Wysokorozdzielczym przekrojem poprzecznym otrzymanym za pomocą mikroskopii elektronowej (*HRTEM cross section*, Fig.4.5) wykazuje bardzo dobry wzrost krystaliczny poszczególnych warstw Pt, W i Co czym potwierdza wysoką jakość wytwarzanych przez siebie próbek. Następnie wyznacza, poprzez zmianę grubości  $d_W = 0 \div 10 \text{ nm}$  i  $d_{\text{Co}} = 0.3 \div 3 \text{ nm}$ , krytyczne grubości dla W i Co przejścia od anizotropii w płaszczyźnie do prostopadłej (tzw. krytyczna grubość *Spin Reorientation Transition SRT*) (Fig.4.8 i Fig.3 JMMM) na próbkach Pt(40)/W( $d_W$ )/Co( $d_{\text{Co}}$ )/Pt(3). Na przykładzie układu Pt/W( $d_W$ )/Co(1.8)/Pt bada stan polaryzacji spinowej interfejsów W/Co i Co/Pt (*proximity effect*). Z pomiarów BLS na próbce Pt/W(2.4)/Co(0.6)/Pt wyznacza  $i\text{DMI} = 1.12 \text{ mJ/m}^2$ , otrzymuje wartość znacznie większą niż dla takich samych układów warstwowych nanoszonych katodowym rozpylaniem ( $D_{\text{eff}} = 0.2 \text{ mJ/m}^2$ ). Na tej samej próbce przechodząc od labiryntowej struktury domenowej w stanie remanencji indukuje polem magnetycznym ( $\approx -0.36 \text{ mT}$ ) pęcherzykową (bubble-like) DS (Fig. 4.10 d, Fig.5d JMMM). Przeprowadzone badania zostały opublikowane w pracy JMMM(2022).

Dane z badań układu W/Co/Pt odnośnie zakresów grubości warstw zapewniających PMA,  $i\text{DMI}$  i pęcherzykową DS są punktem wyjścia dla doktoranta do projektowania układów FM/HM/FM międzywarstwowo wymiennie sprzężonych (*Interlayer Exchange Coupling IEC*) opisanych w rozdziale 5. *W/Co/Pt structures with moderate repetition number*. Celem Jego badań było sprawdzenie, czy oprócz oddziaływania DMI również inne efekty takie jak właśnie sprzężenie IEC oraz dipolowe oddziaływanie magnetostatyczne, indukowane strukturą domenową, wzmacniają stabilność topologiczną struktury skyrmionowej. Doktorant wytwarza matrycę komórek, na układzie  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)/\text{Pt}(40)/\text{W}(1)/\text{Co}(1)/\text{Pt}(d_{\text{Pt}})/\text{W}(d_{\text{W}})/\text{Co}(1)/\text{Pt}(3)$ , które następnie bada w funkcji zmian grubości warstw W i Pt. Nie obserwuje sprzężenia kiedy przekładka jest z jednakowego rodzaju materiału W lub Pt. W przypadku przekładki złożonej z warstwy podwójnej Pt/W otrzymuje sprzężenie antyferromagnetyczne w zakresie od 1.4 nm do 2.4 nm dla przypadku równych grubości Pt i W ( $d_{\text{Pt}} = d_{\text{W}}$ ). Z kolei, sprzężenie antyferromagnetyczne maleje ze wzrostem  $d_{\text{Pt}} + d_{\text{W}}$  z tendencją zmiany na ferromagnetyczne. Doktorant pokazuje pętle  $M(H)$  poza przekątną matrycy ( $d_{\text{Pt}} = d_{\text{W}}$ ), które mają charakter sprzężenia zarówno ferro- jak również antyferromagnetycznego, nie wyjaśnia z jakim mechanizmem, z jaką naturą sprzężenia mamy do czynienia.

Kolejny ciekawy wynik opisany przez doktoranta w podrozdziale 5.2. *Couplings in W/Co/Pt multilayers* to wytworzenie struktury sztucznego antyferromagnetyka (*Synthetic Antiferromagnet SAF*)  $[\text{Co}(1)/\text{Pt}(d_{\text{Pt}})/\text{W}(d_{\text{W}})/\text{Co}(1)]_n/\text{Pt}(3)$  o dwóch grubościach przekładki Pt/W  $d_{\text{W}} = d_{\text{Pt}}$  równy 0.5 nm i 1 nm oraz liczbie powtórzeń  $n=6$  i 7. Dla przekładki  $n=6$  otrzymał, zgodnie z przewidywaniem, skompensowany SAF, natomiast nieskompensowany SAF dla  $n=7$ . Oba układy wykazują wielokrotne przełączanie podczas przemagnesowywania polem prostopadłym. Ten efekt wielostanowych przełączaczy magnetyzacji, indukowany oddziaływaniem spinowo-orbitalnym, antyferromagnetycznym sprzężeniem międzywarstwowym, w obecności prostopadłej anizotropii magnetycznej, ma moim

zdaniem potencjalnie duże znaczenie praktyczne. Wyniki badań opisane w rozdziale 5 nie zostały opublikowane.

Znaczne wzmocnienie dipolowego oddziaływania magnetostatycznego w wyniku silnej labiryntowej struktury domenowej (Fig.5.8) M.Sc. Jena uzyskał dla układów  $[W(1)/Co(1)/Pt(1)]_n$   $n=6$  i  $7$ . Problem ten doktorant rozwinął badając układy  $[W(1)/Co(0.6)/Pt(1)]_n$  z  $n=10$  i  $20$ , wyniki opisał w rozdziale 6. *Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in the epitaxial W/Co/Pt multilayers* i pod tym samym tytułem opublikował w *Nanoscale* (2021).

Na podstawie badań opisanych w artykule i rozdziale 6. dysertacji można sformułować następujące najważniejsze wnioski z badań iDMI w epitaksjalnych warstwach W/Co/Pt:

- układy wielowarstwowe  $[W(1)/Co(0.6)/Pt(1)]_n$  typu super sieci wytworzone metodą MBE wykazują bardzo dobrą jakość krystaliczną interfejsów (brak wymieszania) i silnie steksturowaną strukturę warstw, w przeciwieństwie do polikrystalicznych słabo stekstrowanych podobnych układów powszechnie wytwarzanych techniką nanoszenia magnetronowego,
- oddziaływanie iDMI w tego rodzaju asymetrycznych układach indukuje powstanie skyrmionowych struktur spinowych stabilizujących konfiguracje magnetyzacji z nietrywialną topologią,
- bardzo wysokie wartości współczynnika  $D_{\text{eff}} = 2.64 \text{ mJ/m}^2$  i powierzchniowego parametru DMI  $D_s = 1.83 \text{ pJ/m}$  (znacznie przekraczających wartości uzyskane dla układów rozpylanych katodowo  $0.2$  do  $1.5 \text{ mJ/m}^2$ ) wyznaczył z analizy paskowej struktury domenowej, metodą anizotropii efektywnej, dla liczby powtórzeń  $n=10$ ,
- otrzymane w eksperymencie wyniki stałych DMI korelują bardzo dobrze z wynikami uzyskanymi z modelowania mikromagnetycznego oraz obliczeń teorii funkcjonału gęstości (DFT). Modelowanie teoretyczne, na podstawie danych z eksperymentu, wykonali współautorzy publikacji: Ewa Milińska obliczenia mikromagnetyczne, Rajibul Islam i Carmine Autieri obliczenia DFT.

Rozprawę doktorską M.Sc. Jena kończy zredagowanym ogólnym podsumowaniem. Układ treści pracy jest przejrzysty, wzorowany na zagranicznych dysertacjach doktorskich, rozdziały zostały ułożone logicznie, od wprowadzenia w tematykę badanego zagadnienia, przez opis metod badawczych, do wyników badań i konkluzji końcowej. Forma graficzna bardzo staranna. Nie zauważyłem poważniejszych błędów i pomyłek, jedynie drobne błędy edytorskie, jak na przykład:

- w tytule rozdziału 4. jest: *Structural and magnetic properties of single and multilayers W/Co/Pt heterostructures* powinno być „..... of single Co...”
- str. 88 dół odwołanie do „...figure 4.17 (a).” której nie ma, prawdopodobnie miało być „figure 5.6”?
- str. 107 doktorant wspomina o wynikach dla układu Re/Co/Pt, nie znalazłem takich w całej rozprawie.

Na koniec warto wspomnieć o potencjalnych możliwościach zastosowania układów HM/FM, które głównie skupiają się na projektowaniu i wytwarzaniu elementów (*spintronic devices*) sterowanych prądem, w których przełączanie magnetyzacji jest realizowane za pomocą efektu *spin orbit torque*

(SOT). Rozwiązania te, jak wspominałem wcześniej, przede wszystkim znajdują zastosowanie w pamięciach SOT-MRAM, w których aktywne warstwy nanoszone są na wysoko rezystywną warstwę buforową (np. Ta). Ze względu na wymaganą masowość w produkcji przemysłowej, użycie utlenionych podłoży krzemowych (*Si/SiO<sub>2</sub> wafer*) oraz kompatybilność z technologią CMOS konieczna jest szybka metoda nanoszenia, który to warunek spełnia metoda magnetronowego napyłania (*sputtering*). Zaprezentowana w dysertacji metoda MBE polega na hodowaniu (bardzo wolnym nanoszeniu) warstw praktycznie monokrystalicznych, dlatego technologia ta wymaga bardzo grubych warstw buforowych (*seed-buffer*), w tym przypadku była stosowana warstwa Pt (10 lub 40 nm), która powoduje efekt bocznikowania prądu (*current shunt effect*), który nie płynie przez aktywne magnetycznie warstwy skutkiem czego brak interfejsowej akumulacji spinowej na granicy HM/FM, w konsekwencji nie działa efekt przełączania SOT. Chciałbym się dowiedzieć od doktoranta jakie są możliwości wykonania, za pomocą metody MBE przełączany prądowo element SOT, jaka powinna być jego struktura warstwowa?

### Ocena rozprawy i uzasadnienie wyróżnienia

Podsumowując stwierdzam, że dysertacja doktorska M.Sc. Sukanta Kumara Jeny pt. *Magnetic properties of asymmetric layered heavy metal / ferromagnet systems* zawiera **nowe bardzo interesujące i oryginalne wyniki**, częściowo opublikowane w wysoko indeksowanych czasopismach. Doktorant wytworzył i przebadął wszechstronnie asymetryczne struktury W/Co/Pt bazując na własnych eksperymentach i analizach uzyskując znacznie wyższe wartości oddziaływania DMI w porównaniu do dotychczas publikowanych. Za pomocą oryginalnego modelu domenowego ( $K_{\text{eff}}$ ) wyznaczył w periodycznych układach wielowarstwowych stałą DMI oddziaływania powierzchniowego, który to wynik uważam za niezwykle oryginalny.

Doktorant wykazał ogólną wiedzę z magnetyzmu, opanował metodę epitaksjalnego nanoszenia cienkich warstw oraz ich charakteryzacji magnetycznej i strukturalnej, wykazując tym samym umiejętność samodzielnego prowadzenia badań naukowych.

Biorąc pod uwagę bardzo **nowatorskie i oryginalne wyniki badań**, ich wnikliwe i krytyczne opracowanie w formie rozprawy doktorskiej oraz dorobek publikacyjny stawiam wniosek o wyróżnienie pracy doktorskiej M.Sc. Sukanta Kumara Jeny pt. *Magnetic properties of asymmetric layered heavy metal / ferromagnet systems*.

### Wniosek końcowy

Na podstawie przeprowadzonej merytorycznej oceny rozprawy doktorskiej stwierdzam, że spełnia ona wymagania stawiane rozprawom doktorskim przez obowiązujące przepisy. Dlatego biorąc pod uwagę dorobek publikacyjny M.Sc. Sukanta Kumara Jeny i bardzo wysoką naukowo ocenę Jego rozprawy doktorskiej uważam, że w myśl ustawy z 14 marca 2003 r. (Dz. U. Nr 65, poz. 595, z późn. zm.) o stopniach naukowych i tytule naukowym oraz o stopniach i tytule w zakresie sztuki M.Sc. Sukanta Kumar Jena spełnia wymagania stawiane kandydatom do stopnia naukowego doktora nauk fizycznych, w dziedzinie nauk ścisłych i przyrodniczych w dyscyplinie nauki fizyczne, wnioskuje o dopuszczenie do publicznej obrony przedstawionej rozprawy oraz stawiam wniosek o jej wyróżnienie.



