

Kraków, 12.07.2021

dr hab. inż. Michał Ślęzak, prof. AGH

Katedra Fizyki Ciała Stałego

Wydział Fizyki i Informatyki Stosowanej AGH

Al. A. Mickiewicza 30

30-059 Kraków

Email: [mislezak@agh.edu.pl](mailto:mislezak@agh.edu.pl)

**Recenzja rozprawy doktorskiej mgr. inż. Łukasza Frąckowiaka pt. „Oddziaływania pomiędzy warstwami ferromagnetyczną i ferrimagnetyczną oraz w obrębie ferrimagnetycznej warstwy poddanej strukturyzacji magnetycznej”**

Prowadzone od kilku dekad intensywne badania efektów magnetycznych w cienkich warstwach i nanostrukturach doprowadziły do bardzo ważnych odkryć i zastosowań. Wśród tych najbardziej spektakularnych czy szerzej znanych wymienić można zjawisko gigantycznego magnetooporu, za które odkrywcy, Albert Fert i Peter Grünberg, otrzymali w 2007 roku Nagrodę Nobla w dziedzinie fizyki. Kolejne ważne odkrycia oraz ich już wykorzystywane jak również potencjalne zastosowania powodują, że dziedzina magnetyzmu układów niskowymiarowych rozwija się bardzo dynamicznie. Rozprawa doktorska mgr. inż. Łukasza Frąckowiaka pt. „Oddziaływania pomiędzy warstwami ferromagnetyczną i ferrimagnetyczną oraz w obrębie ferrimagnetycznej warstwy poddanej strukturyzacji magnetycznej” jest bezpośrednio związana z tą tematyką. Autor skupia się w swoich badaniach na oddziaływaniach pomiędzy warstwami ferromagnetyczną i ferrimagnetyczną, jak również opisuje właściwości magnetyczne i możliwości ich lokalnej modyfikacji w przypadku warstw ferrimagnetycznych typu ziemia rzadka – metal przejściowy.

Praca została wykonana w Instytucie Fizyki Molekularnej Polskiej Akademii Nauk w Poznaniu a jej promotorem jest dr hab. inż. Piotr Kuświk. Realizacja badań prezentowanych w rozprawie finansowana była przez Narodowe Centrum Nauki w ramach projektów SONATA BIS nr UMO-2015/18/E/ST3/00557 i PRELUDIUM nr UMO-2018/31/N/ST5/01810. Praca doktorska liczy w sumie 107 stron i zawiera informatywne streszczenia w języku polskim i angielskim, listę publikacji, wstęp a następnie w rozdziałach drugim, trzecim i czwartym przystępne wprowadzenie w tematykę magnetyzmu cienkich warstw, ferrimagnetyzmu w warstwach stopów Tb-Co i Tb-Fe oraz przegląd użytych metod badawczych, odpowiednio. Przed kończącymi pracę podsumowaniem i spisami literatury, rysunków oraz tabel autor dokonuje dokładnego opisu uzyskanych wyników. Najważniejsze spośród prezentowanych w pracy wyników zostały opublikowane w cyklu trzech spójnych tematycznie

artykułów. Należy zwrócić uwagę na fakt, że wspomniane artykuły zostały opublikowane w bardzo prestiżowych czasopismach (Physical Review Letters oraz Scientific Reports) a doktorant jest ich pierwszym autorem. Dodatkowo artykuł w PRL został przez edytorów wyróżniony jako Editors' Suggestion. Autor rozprawy jest również współautorem publikacji w czasopiśmie IEEE Trans. Magn. Tematyka pracy jest w mojej ocenie bardzo ciekawa a uzyskane wyniki są ważne i bardzo dokładnie udokumentowane. Do tej kwestii odniosę się bardziej szczegółowo w dalszej części recenzji, przy okazji analizy rozdziałów nr 5, 6 i 7 oraz wspomnianych trzech publikacji. Wysoko oceniam również sposób przygotowania i sam układ pracy doktorskiej, w której autor opisuje i podaje wiele informacji, których czytelnik nie znajdzie w samych publikacjach. Czytelnikowi nie znającemu szczegółów dotyczących niektórych efektów fizycznych czy technik eksperymentalnych wykorzystywanych w pracy znacząco ułatwia to odbiór pracy i tym samym podnosi jej wartość. Poniżej pozwolę sobie opisać moje uwagi, komentarze i pytania do konkretnych fragmentów rozprawy.

W rozdziale pierwszym autor dokonuje ciekawego wprowadzenia, pokrótce zarysowuje tło historyczne badań nad warstwami ferrimagnetycznymi ziemia rzadka - metal przejściowy i wskazuje co spowodowało ponowny wzrost zainteresowania stopowymi i wielokrotnymi warstwami RE-TM i RE/TM.

Następnie, w rozdziale drugim autor tłumaczy podstawowe pojęcia i efekty z dziedziny magnetyzmu cienkich warstw, które są szczególnie istotne z punktu widzenia rozprawy. Chodzi tu konkretnie o uporządkowanie magnetyczne, oddziaływanie wymienne, anizotropie magnetyczną i powstawanie domen magnetycznych w warstwach F i FI oraz o pośrednie i bezpośrednie oddziaływania międzywarstwowe (sprężenie RKKY oraz oddziaływanie wymienne typu *exchange bias*) w układach F/FI oraz F/AF. Uważam, że podany opis jest bardzo przystępny i co również należy pochwalić, w uzasadnionych przypadkach skrócony do niezbędnego minimum, jak to ma np. miejsce w przypadku anizotropii magnetokrystalicznej, która z punktu widzenia badanych w pracy układów jest pomijalna. Można też wskazać przypadki gdy opis urywa się w mało oczekiwanym miejscu, jak to ma miejsce przy rysunku 2 a-c. Ten piękny i wręcz podręcznikowy przykład oscylacyjnego charakteru sprzężenia warstw ferromagnetycznych (Fe) przez przekładkę niemagnetyczną (Cr) został tu bardzo słusznie przywołany przez autora. Przyznaje, że prezentowane schemat i wyniki z mikroskopu SEMPA są prawie, że „samo-tłumaczące się” ale jednak brakuje tu dwóch zdań opisu sprzężenia, a zwłaszcza okresu jego oscylacji. Ogólniej, w podrozdziale 2.2.1 krótki przegląd danych literaturowych dotyczących okresu oscylacji RKKY w układach warstwowych byłby przydatny. Do innych, nielicznych niedopatrzeń zaliczyć można np. opis równania 2.8 określającego przyczynek do energii układu wynikający z magnetycznej anizotropii powierzchniowej. Opisanie w tekście wektora magnetyzacji  $m$  oraz normalnej do płaszczyzny  $n$  nie występują w równaniu 2.8. W podrozdziale 2.2.2 autor definiuje „oddziaływanie wymienne typu *exchange bias* (EB) prowadzące do anizotropii jednozwrotowej (brak symetrii procesu przemagnesowania względem zwrotu  $H$  podczas przemagnesowania **polem magnetycznym**



skierowanym wzdłuż osi łatwej)”. Chciałbym tu uściślić, że taki brak symetrii i związany z nim efekt EB obserwuje się czasem (choć nie zawsze) również gdy pole magnetyczne jest przykładane wzdłuż osi trudnych ferromagnetyka. Innymi słowy, „trudna” pętla histerezy magnetycznej może być również przesunięta względem osi  $H = 0$ . Ponownie chciałbym zwrócić uwagę na dobry wybór rysunku (nr 3) do jakościowego wytłumaczenia efektu EB, któremu jednak nie towarzyszy żaden, nawet krótki opis procesu przemagnesowania. Czytelnik nie zaznajomiony z tą tematyką, niekoniecznie zrozumie powód powstawania omawianej asymetrii pętli histerezy magnetycznej poniżej temperatury Néela. Natomiast wysoko oceniam fakt, że autor wyraźnie wskazał różnice i zalety badań nad EB w układach F/FI w porównaniu do układów F/AF, uwzględniając zarówno ułatwienia eksperymentalne jak i aspekt fizyczny, związany z różną konfiguracją spinową na interfejsie. Tutaj mam uwagę i pytanie. Faktycznie, w przypadku układów F/AF **można by się spodziewać, że** „... aby oddziaływanie EB przyjmowało duże wartości, interfejs AF dla układu F/AF powinien wykazywać możliwie całkowite nieskompensowanie momentów magnetycznych” ponieważ „dla skompensowanego interfejsu F/AF wkłady od wzajemnie, antyrównolegle zorientowanych spinów AF na interfejsie wzajemnie się kompensują”. Jednak w rzeczywistości obserwuje się często duży efekt EB dla interfejsów F/AF nominalnie (lecz również faktycznie) skompensowanych. Jest to jeden z powodów dla których pełne zrozumienie efektu EB uznaje się wciąż za ciekawy temat prac teoretycznych i doświadczalnych. W przypadku układów F/FI muszę niestety przyznać, że nie rozumiem uzasadnienia wniosków wysuwanych na podstawie rysunku 4b. Patrząc tylko na schematyczne przedstawienie oddziaływań pomiędzy spinami zorientowanymi równolegle i antyrównolegle, wyciągnąłbym z rysunków 4 a i b identyczne wnioski co do znaków (nie wielkości) przyczynków  $J_{EX}$  (dodatni dla konfiguracji równoległej i ujemny dla antyrównoległej **w obu przypadkach a i b**). Bardzo proszę o wyjaśnienie. Za bardzo ciekawy i pouczający uważam rozdział 2.3 dotyczący domen magnetycznych. Nie rozumiem tylko narracji, w której konkretna definicja czy wzór opisujące szerokość ściany domenowej powiązane są z konkretną techniką służącą do jej obrazowania. Powinno to raczej się wiązać z właściwościami fizycznymi układu a ograniczenia czy specyfika użytej techniki to raczej osobna kwestia, która oczywiście może wpływać na wyznaczone eksperymentalnie wielkości. Będę wdzięczny za komentarz i/lub ewentualne wyprowadzenie mnie z błędu.

W rozdziale trzecim autor opisuje zjawisko ferrimagnetyzmu w warstwach stopów Tb-Co i Tb-Fe. W szczególności czytelnik znajdzie tu informacje dotyczące oddziaływań magnetycznych pomiędzy atomami RE i TM, prostopadłej anizotropii magnetycznej, konfiguracji momentów magnetycznych i zależności właściwości magnetycznych od stężenia Tb i od temperatury. Ponownie bardzo wysoko oceniam przystępny charakter prezentowanych opisów, dotyczy to np. omówienia oddziaływań pomiędzy atomami RE i TM w rozdziale 3.1 czy schematycznego przedstawienia mechanizmów powstawania lub znikania ścian domenowych w podwójnych warstwach ferrimagnetycznych RE-TM (rozdział 3.2).

W kolejnym rozdziale (czwartym) znajdujemy informacje dotyczące technik pomiarowych stosowanych podczas realizacji pracy, jak zaznacza sam autor z wyłączeniem opisanych dopiero w rozdziale piątym metod preparatyki badanych układów. Autor w zrozumiały sposób przybliży czytelnikowi ideę lokalnej analizy składu próbek (mikroanalizy rentgenowskiej) wykonywanej w skaningowym mikroskopie elektronowym z analizą intensywności fluorescencyjnego promieniowania rentgenowskiego. Następnie autor opisuje podstawy fizyczne i aspekty techniczne pomiarów magnetoptycznych MOKE. Wydaje mi się, że również w tym przypadku odbiorca spoza dziedziny pracy czy magnetyzmu w ogóle powinien być usatysfakcjonowany prezentowanym opisem MOKE. Rozdział ten, podobnie z resztą jak i cała praca jest w mojej ocenie napisany poprawną polszczyzną i z utrzymaniem dobrego stylu a w tym kontekście moje wątpliwości budzi jedynie określenie „pętle minorowe”. Nasuwa to początkowo myśl, że autor był w kiepskim nastroju podczas wykonywanych doświadczeń w co, biorąc pod uwagę jakość wyników, szczerze wątpię. Przyznam jednak, że nie przychodzi mi do głowy inne określenie niż to wynikające z bezpośredniego tłumaczenia angielskiego „minor loops”. Kolejna drobna uwaga dotyczy rysunku 20, na którym prawdopodobnie jest błąd w opisie **na** rysunku (opis pod spodem jest jak rozumiem właśnie poprawny). Czy dobrze rozumiem, że oba obrazy A i B są zapisywane w stanie remanencji (a więc przy zerowym polu zewnętrznym) a różnią się tylko wartością pola przykładanego jako impuls przed pomiarem? Po zwięzłych opisach spektroskopii mas jonów wtórnych, bombardowania jonowego i fotolitografii beznaskowej autor przechodzi do zawartego w (obszernym) rozdziale piątym opisu metodyki wytwarzania warstw wielokrotnych Tb/Co(Fe) i stopowych Tb-Co przy pomocy techniki rozpylania magnetronowego. Rozdział ten zawiera również analizę składu chemicznego (stężeń Tb) i porównanie magnetycznych właściwości warstw stopowych i wielokrotnych, z tego względu można go już zaliczyć do pierwszego z trzech zawierających wyniki badań autora. Przy ciekawym i dość szczegółowym opisie aspektów technicznych preparatyki próbek zwraca np. uwagę rysunek 21, który znakomicie tłumaczy sposób uzyskiwania warstw stopowych. Dokładny opis modelowania rozkładu stężenia stopowych warstw Tb-Co nie tylko pokazuje zaangażowanie i zdolności autora pracy lecz również potencjalnie umożliwia skorzystanie z zawartych informacji czytelnikowi planującemu podobne eksperymenty. Na mnie osobiście duże wrażenie zrobiły prezentowane na rysunkach 28 i 29 dwuwymiarowe mapy rozkładu grubości stopu Tb-Co i stężenia Tb na podłożu oraz ich porównanie i zgodność z danymi eksperymentalnymi, uzyskanymi przy pomocy mikroanalizy rentgenowskiej. Tak niezwykle solidna chemiczna analiza badanych układów to znakomita baza do rzetelnych i miarodajnych pomiarów właściwości magnetycznych prezentowanych w dalszych częściach rozprawy. I tak, już w podrozdziale 5.3 autor dokonuje porównania magnetycznych właściwości warstw stopowych i wielokrotnych. Podsumowując tą część pracy, autor dokładnie udokumentował możliwość wygodnego i efektywnego preparowania próbek o zmiennym stężeniu wybranego składnika (w tym przypadku Tb) zarówno dla układów stopowych jak i wielowarstwowych. Redukuje to drastycznie liczbę koniecznych próbek i jednocześnie zapewnia identyczne warunki preparatyki dla obszarów o różnych stężeniach. Dzięki



takiemu podejściu łatwiejsza i zdecydowanie bardziej jednoznaczna jest późniejsza analiza właściwości magnetycznych badanych układów. Wartość tego rozdziału jest moim zdaniem nie do przeceniania z punktu widzenia wyników prezentowanych w dwóch kolejnych rozdziałach.

Podsumowując pierwszą część pracy (rozdziały 1 - 5), stanowi ona swego rodzaju praktyczny przewodnik zawierający wiele informacji cennych dla czytelnika mniej zaznajomionego z tematyką a bezpośrednio niedostępnych w publikacjach autorstwa doktoranta. Uważam, że przewodnik ten cechuje trafny wybór poruszonych w nim tematów oraz wysoka jakość merytoryczna opisów a mniejsze czy większe niedociągnięcia edytorskie lub językowe (nieliczne literówki, błąd w nazwisku znanego fizyka, itp.) w żaden praktyczny sposób nie obniżają jego wartości. Wszystko to znacząco ułatwia czytelnikowi analizę dalszej części rozprawy, w której autor prezentuje już najciekawsze wyniki doświadczeń i ich interpretację.

W rozdziale szóstym autor opisuje wyniki badań dotyczących oddziaływań wielowarstw ferromagnetycznej z ferrimagnetyczną, przy czym zarówno składowe układu F jak i FI wykazują prostopadłą anizotropię magnetyczną (PMA). Celem badań było zaprezentowanie możliwości manipulacji wartościami pól przełączania warstwy F w strukturze F/FI. Kolejno w rozdziałach 6.1.1-3 zaprezentowana została analiza wpływu sekwencji warstw otaczających przekładkę Au rozdzielającą warstwy ferromagnetyczną i ferrimagnetyczną.

Autor stwierdza, że w przypadku próbek z klinową przekładką Au, jednoznaczna interpretacja wyników wymagała wykonania subwarstw Tb o stałej grubości. Dlaczego? Podejrzewam, że próbki z „podwójnymi klinami”, w których grubości podwarstw Au i Tb zmieniają się wzdłuż dwóch ortogonalnych kierunków, nie stanowią problemu na etapie preparatyki. Prawdopodobnie również pomiary PMOKE w takiej dwuwymiarowej przestrzeni ( $d_{Au}$ ,  $d_{Tb}$ ) powinny być chyba stosunkowo wygodne a ich zaletą byłaby redukcja próbek z rysunku 37a-c do jednej czy dwóch próbek. Czy też jednak problemem jest tutaj zbyt duże uśrednianie (po grubości Au i/lub Tb) właściwości magnetycznych w pomiarze PMOKE?

Opis procesów przemagnesowania oraz zależności pól przełączania układu i podwarstw F i FI jest dość skomplikowany ale zrozumiały. Na uwagę zasługuje również dbałość autora o sposób prezentacji danych ilościowych, wykresy w funkcji grubości Tb wymagają przy ich analizie dużego skupienia ale widać, że zostały dobrze przemyślane i bardzo porządnie przygotowane.

Czy dobrze rozumiem, że w podrozdziale 6.1.3 (który autor klasyfikuje jako „uzupełnienie”) zależność od grubości przekładki Au została uzyskana dla układu typu B, czyli przekładka w otoczeniu Co i Tb? Dla grubości  $d_{Au} = 1$  nm obserwujemy tu maksimum sprzężenia antyferromagnetycznego pomiędzy F i FI. Dla próbek w których przekładka Au otoczona jest podwarstwami Co lub Fe, oddziaływanie ma charakter ferromagnetyczny (pokazano to dla  $d_{Au} = 1$  nm). Czy dla układów typu A były badane inne grubości przekładki Au i czy ewentualnie obserwowano również sprzężenie antyferromagnetyczne?

Podsumowując, rozdział szósty bardzo dokładnie dokumentuje istotną z punktu widzenia zastosowań możliwość manipulacji polami przełączeń warstwy ferromagnetycznej, przy czym kontrola stanu magnetycznego odbywa się poprzez odpowiedni dobór grubości podwarstw Tb oraz architektury wielowarstwowej struktury układów F/Fl.

W rozdziale siódmym autor opisuje możliwości manipulacji lokalnymi właściwościami magnetycznymi wielokrotnych warstw Tb/Co o anizotropii PMA, poprzez bombardowanie jonami  $\text{He}^+$ . Już na samym początku w podrozdziale 7.1 autor opisuje ciekawe efekty związane z indukowanym poprzez bombardowanie jonami przesunięciem grubości krytycznej SRT i punktu kompensacji w stronę większych  $d_{\text{Tb}}$ . Efekty te bardzo dobrze tłumaczą wyniki uzyskane przy pomocy techniki SIMS. W tym miejscu rozprawy duże wrażenie robią świetnie wyeksponowane głębokościowa i chemiczna czułość metody, w szczególności ciekawy i ważny jest profil koncentracji tlenu po bombardowaniu. Maksyma tego profilu idealnie korelują z lokalizacjami podwarstw Tb i na tej właśnie podstawie autor wnioskuje, że obserwowane efekty mają swoje źródło w wywołanej utlenianiem magnetycznej dezaktywacji podwarstw Tb. W podrozdziale 7.2 na szczególną uwagę zasługują natomiast obrazy różnicowe z mikroskopu PMOKE, które ilustrują lokalne procesy przemagnesowania w dwuwymiarowych sieciach Co/Tb modyfikowanych jonowo. Zgadzam się z autorem (i najwyraźniej również z recenzentami i edytorami Physical Review Letters), że najciekawszym wynikiem opisanym w tej części rozprawy jest obserwacja stanów jednodomenowego z obecnością i wielodomenowego bez obecności ścian domenowych. Wynik ten został dodatkowo bardzo ładnie podsumowany w formie graficznej na rysunku nr 65, w kończącym rozprawę podsumowaniu.

Podsumowując, przedstawiona do recenzji rozprawa doktorska mgr inż. Łukasza Frąckowiaka stanowi spójny tematycznie i bardzo ciekawy opis właściwości magnetycznych cienkowarstwowych układów typu ferromagnetyk/ferrimagnetyk i modyfikowanych jonowo wielowarstw ferrimagnetycznych. W pracy zaprezentowano możliwość kontrolowanej manipulacji wartościami pól przełączeń, anizotropią magnetyczną i strukturą domenową oraz procesami przemagnesowania w wyżej wymienionych układach. Uważam, że zaprezentowane wyniki stanowią bardzo duży wkład do rozwoju dziedziny magnetyzmu cienkich warstw. Na tej podstawie stwierdzam, że praca spełnia ustawowe wymagania stawiane rozprawom doktorskim i może być dopuszczona do dalszych etapów przewodu doktorskiego. Ponadto, w przypadku wyróżniającego się przebiegu obrony pracy doktorskiej będę wnioskował o wyróżnienie recenzowanej rozprawy.

Kraków 12.07.2021

*Michał Słęczak*