

Warszawa, 29 października 2015

dr hab. Andrzej Wawro, prof. nzw. PAN
Instytut Fizyki PAN w Warszawie

**Recenzja rozprawy doktorskiej mgr inż. Michała Matczaka pt.:
*Modyfikacje anizotropii i oddziaływań w magnetycznych strukturach cienkowarstwowych***

Przedstawiona do recenzji rozprawa doktorska została wykonana przez mgr inż. Michała Matczaka w Instytucie Fizyki Molekularnej Polskiej Akademii Nauk w Poznaniu pod kierownictwem naukowym prof. dra hab. inż. Feliksa Stobieckiego jako promotora oraz dra inż. Piotra Kuświka, który pełnił rolę promotora pomocniczego.

Magnetyczne metaliczne układy cienkowarstwowe, którym poświęcona jest rozprawa, ze względu na ograniczony rozmiar w jednym kierunku cechują się dużym udziałem atomów znajdujących się na interfejsach oraz grubością warstw składowych mniejszych niż pewne charakterystyczne długości fizyczne. Istotną rolę zaczynają wtedy odgrywać zjawiska powierzchniowe (np. powierzchniowa anizotropia magnetyczna), efekty odmagnesowania, sprzężenia międzywarstwowe, czy rozpraszanie elektronu zależne od jego spinu. Takie struktury wykazują unikalne właściwości, które zasadniczo różnią się od właściwości objętościowych materiałów składowych. Odpowiedni dobór podstawowych wielkości charakteryzujących strukturę układów cienkowarstwowych pozwala na intencjonalne modyfikowanie ich właściwości, a w konsekwencji – wytwarzanie nowej klasy materiałów. Układy takie stwarzają nie tylko szerokie możliwości badania fundamentalnych zjawisk fizycznych, ale również znajdują zastosowania praktyczne. Dlatego też są one przedmiotem szerokiego zainteresowania wielu ośrodków badawczych.

W przedstawionej rozprawie doktorant opisał właściwości magnetyczne i transportowe struktur warstwowych zawierających dwie warstwy magnetyczne Co o namagnesowaniu prostopadłym. Dodatkową gradientową modyfikację tych właściwości uzyskano dzięki liniowo zmieniającej się grubości warstw magnetycznych lub przekładki niemagnetycznej. Inną metodą indukowania gradientowych zmian właściwości było naświetlanie warstw wiązką lekkich jonów z dozą o odpowiednim profilu przestrzennym. Dzięki takiej konfiguracji próbek doktorant mógł podjąć badania właściwości magnetycznych (np. pola koercji H_c , pola przełączania namagnesowania H_s , czy sprzężenia) w funkcji zmieniających się parametrów strukturalnych, szybkości ich zmian przestrzennych i ich korelacji z magnetyczną strukturą domenową. Szczególna uwaga była poświęcona kształtom ścian domenowych, ich dynamice w obecności zewnętrznego pola magnetycznego oraz możliwości precyzyjnego pozycjonowania pojedynczej ściany domenowej na odległościach makroskopowych.

Analizowane próbki wytworzone zostały w Instytucie Fizyki Molekularnej Polskiej Akademii Nauk (IFM PAN) metodą rozpylania (ang.: *sputtering*) magnetronowego. Modyfikacje strukturalne przy pomocy naświetlania wiązką jonów He o energii 10 keV przeprowadzono na Uniwersytecie w Kassel. Do badań strukturalnych i magnetycznych zastosowano liczne, komplementarne techniki. Analizę strukturalną technikami reflektometrii rentgenowskiej (XRR), dyfrakcji rentgenowskiej (XRD) i mikroskopii sił atomowych (AFM) wykonano w ośrodkach poznańskich. Badania magnetyczne z użyciem technik magnetooptycznych, wykorzystujących polarny efekt Kerra (PMOKE), częściowo prowadzono na Uniwersytecie w Białymstoku (w grupie prof. Maziewskiego) oraz w Instytucie Leibniza w Dreźnie. Wielkość anizotropii magnetycznej wyznaczono na podstawie pomiarów rezonansu ferromagnetycznego z wykorzystaniem wektorowego analizatora obwodów (FMR-VNA) w IFM PAN. Badań

magnetooporu na stanowisku wielokontaktowym dokonano również w IFM PAN we współpracy z Uniwersytetem w Kassel.

Recenzowana rozprawa doktorska ma postać zbioru opublikowanych już prac (tzw. zszywkii) opatrzonego dodatkowymi informacjami autora. Niewątpliwą zaletą takiej formy jest zrecenzowana już zawartość merytoryczna, pozbawiona ewentualnych błędów czy niedociągnięć. Należy też przypuszczać, że czasochłonność przygotowania rozprawy w tym kształcie jest znacznie mniejsza niż w dotychczas przyjętej praktyce. Uważam jednak, że takie podejście ma też kilka wad. Należy do nich zliczyć m. in. brak możliwości przedstawienia pełnych wyników uzyskanych przez doktoranta oraz różne oznaczenia tych samych parametrów w poszczególnych artykułach, co może stanowić pewne utrudnienie, gdy czyta się je wszystkie w krótkim odstępie czasu i porównuje przedstawione wyniki. Rozprawę rozpoczyna streszczenie w języku polskim i angielskim. Po nim przedstawiona jest lista publikacji stanowiących materiał rozprawy. Następnie zamieszczony jest komentarz zawierający motywację podjętych badań oraz cel pracy. Dalsze rozdziały są wprowadzeniem teoretycznym do zagadnienia anizotropii magnetycznej w cienkich warstwach (rozdział 3) i oddziaływania międzywarstwowego (rozdział 4). W rozdziale 5 podane są podstawy wytwarzania i modyfikacji warstw oraz opis zastosowanych technik pomiarowych. Krótkie omówienie poszczególnych prac jest treścią rozdziału 6. Podsumowanie komentarza i bibliografia oraz lista pozostałych prac współautorstwa doktoranta zawarte są w rozdziale 7. Dalszą część stanowi zasadnicza zawartość rozprawy, tj. 6 oryginalnych opublikowanych prac (oznaczonych jako Mat-A do Mat-F). Rozprawę zamykają oświadczenia 17 współautorów opisujących swój udział w przedstawionych przez doktoranta pracach.

W pierwszej pracy (Mat-A) doktorant zaproponował cienkowarstwową strukturę sensora pola magnetycznego zmieniającego pod jego wpływem opór elektryczny oraz eksperymentalnie udokumentował jego właściwości. Badana struktura składała się z dwóch warstw Co, oddzielonych przekładką Au. Jedna warstwa Co wykonana była w formie klina, natomiast druga miała jednorodną grubość. Odpowiedni dobór zakresu grubości warstwy klinowej (magnetycznie miękkiej) pozwalał na kontrolowane pozycjonowanie w niej ściany domenowej oddzielającej domenę o odwróconym namagnesowaniu pod wpływem przyłożonego impulsu pola magnetycznego od części nieprzemagnesowanej. Kierunek namagnesowania warstwy jednorodnej (twardej) nie zmieniał się w zakresie przykładanych pól. Magnetoopór elektryczny struktury, zależny od wzajemnego namagnesowania obu warstw składowych, zmieniał się wraz z pozycją ściany domenowej, którą można było kontrolować wielkością przyłożonego pola magnetycznego. W badanym układzie uzyskano liniową zależność magnetooporu od przyłożonego pola, która jest istotną właściwością takiej struktury jako sensora pola magnetycznego.

W pracy Mat-B badany był układ dwóch warstw Co o jednakowej grubości (0.6 nm) osadzonych na schodkowym buforze Au i oddzielnych od siebie klinową przekładką Au. Zadaniem schodkowego bufora o różnej teksturze, rozmiarze ziaren i szorstkości powierzchni, które zależały od jego grubości, było intencjonalne modyfikowanie struktury warstw Co, a w konsekwencji ich pola przemagnesowania. Z kolei klinowa przekładka Au powodowała zmianę energii sprzężenia międzywarstwowego. Badania strukturalne (XRD, XRR oraz AFM) pokazały wzrost wielkości ziaren i szorstkości powierzchni ze wzrostem grubości bufora Au. Przy pomocy techniki VNA-FMR wyznaczono stałą anizotropii efektywnej oraz rozdzielono wkłady pochodzące od objętości warstwy oraz jej powierzchni. Mniejsza wartość K_v oraz większa K_s dla cieńszego bufora dobrze korelowała z obserwowanymi właściwościami topograficznymi. Na podstawie kształtów pętli histerezy PMOKE wywnioskowano o zmianie typów sprzężeń międzywarstwowo-ze wzrostem grubości przekładki Au: od silnego ferromagnetycznego poprzez słabe ferromagnetyczne aż do antyferromagnetycznego. Choć struktury o najgrubszej przekładce nie były ze sobą sprzężone, to nadal widoczne były różnice w polach przełączania składowych warstw Co, które wyjaśniono odmienną morfologią warstw

(wpływ szorstkości na propagację ściany domenowej). Z kolei dla najmniejszych nominalnych grubości przekładki (poniżej 0.6 nm), przy których szybko obniżała się wartość H_s , układ tracił charakter wielowarstwowy. Z parametru H_{mls} , opisującego wielkość przesunięcia pętli cząstkowej, wyznaczono zależność sprzężenia międzywarstwowego od grubości przekładki Au. Podjęto próbę ilościowego oszacowania wkładów pochodzących od oddziaływań typu RKKY oraz magnetostatycznych, będących konsekwencją struktury typu *orange peel* (równanie 5 oraz dopasowanie na rysunku 6). Wywnioskowano, że grubszy bufor (> 10 nm) powoduje zwiększenie amplitudy RKKY, a wzrost jego szorstkości prowadzi do występowania sprzężenia o charakterze antyferromagnetycznym.

Trzecia praca (Mat-C) poświęcona była układowi dwóch polikrystalicznych warstw Co o jednorodnej grubości oddzielonych przekładką Au. Przestrzenne zmiany anizotropii magnetycznej i parametrów z nią związanych, jak np. H_c uzyskane zostały poprzez naświetlanie struktury wiązką lekkich jonów dwóch ścieżek o różnych gradientach doży F. Właściwości magnetyczne (kształt pętli histerezy, zależność $H_c(F)$) wyznaczone zostały przy pomocy PMOKE. Technika magnetooptyczną zastosowano również do badania struktury domenowej zależnej od H_c i gradientu dH_c/dx . Dla małych wartości H_c proces przemagnesowania pod wpływem przykładanych impulsów pola przebiegał poprzez zarodkowanie wielu domen o małych rozmiarach, w związku z czym granica oddzielająca makroskopowe obszary próbki o różnych kierunkach namagnesowania nie była dobrze zdefiniowana. W obszarach o wyższym H_c ściana domenowa stawała się prostoliniowa, a kontrast magnetyczny – ostry. Na podstawie uzyskanych wyników wywnioskowano, że gradient dH_c/dx istotnie ogranicza termiczne fluktuacje pozycji ściany domenowej w tego rodzaju próbkach. Pozwala on zatem na kontrolowane pozycjonowanie ściany domenowej przy pomocy pola magnetycznego. Oszacowane zostały w sposób zgrubny prędkości ruchu ściany domenowej dla dwóch gradientów anizotropii.

Warstwy analizowane w pracy Mat-D (jednorodne warstwy Co – twarda i miękka – oddzielone klinową przekładką Au) charakteryzowały się przestrzennie zmiennym polem H_s oraz rodzajem sprzężenia od ferromagnetycznego do antyferromagnetycznego wraz ze wzrostem grubości warstwy Au. Przebieg procesu przemagnesowania sugerował występowanie zjawiska kopiowania struktury domenowej w sąsiadujących warstwach magnetycznych. Pokazano, że różnice w przełączaniu warstw Co wynikają z różnej morfologii warstw i wzajemnych sprzężeń typu RKKY, które zostały wyznaczone z parametru H_{mls} charakteryzującego wielkość przesunięcia cząstkowej pętli histerezy. Bez sprzężeń przemagnesowanie warstwy miękkiej zachodziło gwałtowne. Dla występujących sprzężeń międzywarstwowych przemagnesowanie miało wyraźnie dwustopniowy charakter. Zakres pola magnetycznego, w którym pojawiał się pośredni stan namagnesowania, rósł ze wzrostem wielkości sprzężenia – niezależnie od jego typu. W warstwie miękkiej tworzyła się struktura wielodomenowa odwzorowująca geometrię struktury warstwy twardej. Wzajemna orientacja namagnesowania korespondujących domen zależała od charakteru sprzężenia międzywarstwowego. Interpretacja ta uzyskała potwierdzenie w obrazowaniu struktury domenowej przeprowadzonym przy pomocy mikroskopii magnetooptycznej.

Praca Mat-E była blisko związana tematycznie z pracą Mat-D. Grubość warstwy Au była tak dobrana, by zapewnić sprzężenie antyferromagnetyczne pomiędzy miękką warstwą Co w postaci klina i twardą, jednorodną, górną warstwą Co. W pracy tej badano wpływ kopiowania struktury domenowej na właściwości magnetotransportowe układu. W pętli cząstkowej widoczne były dwa poziomy magnetooporu zależne od stanu namagnesowania warstwy miękkiej. Ich wartości zależały od wielodomenowej struktury warstwy twardej. Dwa obszary z podwyższoną wartością magnetooporu odpowiadały zakresom pól, w których występowało kopiowanie struktury domenowej w warstwie miękkiej, wymuszone międzywarstwowym oddziaływaniem antyferromagnetycznym. Zastosowanie mikroskopii magnetooptycznej pokazało różną strukturę domenową miękkiej warstwy Co zależnie od tego, czy warstwa twarda była monodomenowa czy wielodomenowa. Gdy twarda warstwa Co była w stanie

wielodomenowym przemagnesowanie warstwy miękkiej zachodziło dwustopniowo, którego etapy zależały od jej konfiguracji magnetycznej. Pierwszy etap zmieniający namagnesowanie od mono- do wielodomenowego był determinowany przez zarodkowanie domen o odwróconym namagnesowaniu, natomiast drugi z nich zależny był od warunków propagacji ściany domenowej.

W ostatniej pracy (Mat-F), stanowiącej materiał rozprawy, opisano wyniki uzyskane dla układu dwóch jednorodnych warstw Co o różnych polach przemagnesowania oddzielonych tym razem klinową warstwą Pt. Grubość przekładki Pt determinowała wielkość międzywarstwowego sprzężenia ferromagnetycznego. Szczególna uwaga poświęcona była obszarowi próbki, w którym występował silny gradient sprzężenia. Przeprowadzono w nim analizę ruchu ściany domenowej w warstwie o mniejszym polu koercji. Pokazano, że miał on charakter odwracalny – jego kierunek w przestrzeni zależał od kierunku zmian wielkości przyłożonego pola magnetycznego. Wyznaczono prędkość ruchu ściany domenowej w funkcji przyłożonego pola. Zaproponowano wyjaśnienie dlaczego obecności gradientu oddziaływania ruch ściany domenowej nosi charakter ruchu opóźnionego. Efekt hamowania ściany pozwalał na zmniejszenie niekorzystnego wpływu fluktuacji termicznych na propagację ściany. Dzięki gradientowi sprzężenia prostoliniowa ściana domenowa była prostopadła do jej kierunku.

Prace składające się na rozprawę doktorską stanowią spójną i logiczną całość. Przedstawiona została możliwość modyfikowania w pożądanym sposób właściwości magnetycznych próbek poprzez odpowiednie zaprojektowanie ich struktury. Doktorant zrealizował zasadniczy cel, którym była umiejętność wytworzenia struktur warstwowych o właściwościach pozwalających na kontrolowane prowadzenie procesu przemagnesowania poprzez ruch prostoliniowej ściany domenowej na odległości makroskopowe, jak również precyzyjne pozycjonowanie przestrzenne ściany domenowej. Istotnymi czynnikami koniecznymi do osiągnięcia takich właściwości są: wysoka koercja oraz wysoka wartość jej gradientu, które tłumią wpływ fluktuacji termicznych. Ponadto zostały przedstawione i wyjaśnione inne ciekawe zjawiska obserwowane w trakcie realizacji wspomnianego zadania. Wśród nich należy wymienić: wpływ bufora na strukturalne i magnetyczne właściwości składowych warstw Co, określenie sprzężeń międzywarstwowych, wyznaczenie mechanizmów przemagnesowania w zależności od struktury domenowej, replikowanie struktury domenowej pomiędzy twardą i miękką warstwą magnetyczną. Przeprowadzona analiza nie ma jedynie charakteru badań fundamentalnych, wyjaśniających właściwości nanostruktur magnetycznych. Wytworzone struktury mogą również znaleźć zastosowania praktyczne. Oprócz zaproponowanego czujnika pola, mogą być one używane do zapisu magnetycznego, czy kopiowania informacji. Precyzyjne pozycjonowanie rozproszonego pola magnetycznego na powierzchni próbki, którego źródłem jest pojedyncza ściana domenowa, pozwala na zastosowania struktur warstwowych w diagnostyce medycznej np. do selekcjonowania komórek nowotworowych z wprowadzonymi do nich cząsteczkami magnetycznymi na drodze angiogenezy.

Zasopisma, w których opublikowano 6 artykułów składających się na rozprawę, zajmują dość wysoką pozycję na tzw. liście filadelfijskiej. Dwa artykuły opublikowane zostały w *Applied Physics Letters* (impact factor = 3.57), dwa kolejne w *IEEE Transactions on Magnetics* (1.40), a pojedyncze w *Journal of Applied Physics* (2.28) i *Nanoscale Research Letters* (3.01). Doktorant jest również współautorem 5 innych prac spoza tematyki doktoratu. Pod koniec października 2015 wszystkie te prace były cytowane (wg bazy *Web of Science*) 28 razy, z czego 23 razy bez autocytowań. Najwięcej cytowań miała praca Mat-A – 12. Doktorant osobiście wygłosił jeden referat na Zjeździe Fizyków Polskich. Jest współautorem 28 prezentacji plakatowych, z których 9 przedstawiał osobiście.

W czasie czytania prac nasunęło mi się kilka pytań merytorycznych:

1. Wszystkie próbki były osadzane na naturalnie utlenionym podłożu Si. W pracy Mat-A i Mat-E orientacja podłoża miała kierunek (111), a w próbkach z publikacji Mat-C – (100). W pozostałych przypadkach nie była ona w ogóle podana. Czy, a jeśli tak, to jaki wpływ na wzrost wytwarzanych próbek miały podłoża o różnych orientacjach?
2. Publikacja Mat-B jest poświęcona wpływowi grubości warstwy Au w buforze Ti/Au na strukturę i właściwości magnetyczne osadzonej potem wielowarstwy. Doktorant pokazał wyraźną wzajemną zależność pomiędzy tymi parametrami. Dlaczego zatem próbki opisywane w pracach Mat-A i Mat-E wytwarzane były na buforze w postaci warstwy wielokrotnej (Ti/Au)₅?
3. W publikacji Mat-C (str. 3) autor prowadzi dyskusję dotyczącą zależności anizotropii od dozy naświetlających jonów. Zmiany strukturalne zachodzące pod wpływem naświetlania mogą mieć bardzo złożony charakter. Czy doktorant przeprowadził badania lub może ocenić zmiany strukturalne odpowiedzialne za dyskutowaną ewolucję anizotropii?
4. Ze względu na monotoniczny (z pozycją na próbce) przebieg pola H_{sw}^s , przedstawiony w pracy Mat-F na Rys. 1c, nasuwa się pytanie, czy faktycznie w polu -136 Oe (Rys. 2a) ma miejsce zarodkowanie izolowanych domen o namagnesowaniu zgodnym z przyłożonym polem, czy może jest to rozprzestrzenianie się domeny z obszaru, w którym nie występuje już sprzężenie ferromagnetyczne?

Oprócz powyższych niejasności w tekście występuje kilka drobnych błędów natury edytorskiej:

1. W spisie treści rozprawy brakuje pozycji z oświadczeniami współautorów.
2. Grubości bufora Au próbek opisywanych w pracy Mat-B (Tabela I i II, Rysunek 3b i opis w tekście) wykazują brak zgodności. Czy były to różne próbki, czy też wystąpiła pomyłka edytorska?
3. Na Rys. 5 w pracy Mat-D brakuje symbolu Δ na osi wykresu i w jego legendzie.
4. Na Rys. 1 w pracy Mat-F brakuje literowych oznaczeń poszczególnych wykresów.
5. W artykule Mat-F ten sam symbol H użyty jest dla oznaczenia pola magnetycznego i jako indeks dla twardej magnetycznej warstwy Co (*If, at $H \geq 340$ Oe, we start to reverse H, then for $H \approx -130$ Oe....*)

Pomimo wyżej wymienionych uwag uważam przedstawioną rozprawę za bardzo wartościową. Doktorant zastosował szeroki wachlarz technik eksperymentalnych umożliwiających wytworzenie próbek, ich badania strukturalne oraz analizę właściwości magnetycznych i transportowych. Wszystkie prace miały charakter zespołowy. Jednak załączone oświadczenia współautorów, w tym promotora pracy – prof. Feliksa Stobieckiego, oraz pierwsza pozycja na liście autorów dają pewność, że mgr inż. Michał Matczak pełnił wiodącą rolę w powstawaniu przedstawionych prac na wszystkich etapach ich realizacji. Dorobek 11 publikacji, w tym 6 stanowiących rozprawę jest moim zdaniem ponadprzeciętny. Należy też podkreślić uzyskanie przez doktoranta czterech nagród lub stypendiów oraz jego współudział w realizacji pięciu projektów.

Rozprawa doktorska mgra inż. Michała Matczaka pt.: *Modyfikacje anizotropii i oddziaływań w magnetycznych strukturach cienkowarstwowych* spełnia również wymogi formalne zapisane w Art. 13 Ustawy o stopniach naukowych i tytule naukowym oraz o stopniach i tytule w zakresie sztuki z dnia 14 marca 2003. Stanowi ona oryginalne rozwiązanie problemu naukowego opisane w spójnym tematycznie zbiorze artykułów, wykazuje ogólną wiedzę doktoranta w dziedzinie fizyki, zawiera streszczenie w języku angielskim.

Dlatego też wnioskuję o dopuszczenie mgra inż. Michała Matczaka do kolejnych etapów przewodu doktorskiego. W przypadku zadowalającego przebiegu obrony oraz odpowiedzi na postawione pytania zaproponuję wyróżnienie recenzowanej rozprawy.