



UMCS
INSTYTUT FIZYKI

UNIwersytet Marii Curie-Skłodowskiej w Lublinie
Wydział Matematyki, Fizyki i Informatyki

Instytut Fizyki

pl. Marii Curie-Skłodowskiej 1, 20-031 Lublin; tel. (081) 537 61 43; fax (081) 537 61 91
e-mail: fizyka@umcs.lublin.pl; www.fizyka.umcs.lublin.pl

Prof. dr hab. Ryszard Zdyb
Katedra Fizyki Powierzchni i Nanostruktur
Instytut Fizyki UMCS
e-mail: ryszard.zdyb@umcs.pl

Recenzja rozprawy doktorskiej mgr inż. Weroniki Janus
pt. Modulacja właściwości magnetycznych nanostruktur antyferromagnetycznych sterowana
zmianą naprężenia

W rozprawie doktorskiej mgr inż. Weronika Janus podejmuje aktualną tematykę badań nanostruktur magnetycznych. Studiowane w pracy doktorskiej heterostruktury złożone z antyferromagnetyków i ferromagnetyków w skali nano znajdują się wśród materiałów, które już znalazły wiele zastosowań, a odkrywane kolejne, nowe właściwości, zapewniają dalszy rozwój i postęp w dziedzinie spintroniki. Dokonujący się obecnie gwałtowny rozwój elektroniki, w szczególności jej gałęzi związanych z przetwarzaniem, zapisem i detekcją informacji stoi u podstaw motywacji do prowadzenia badań w tym obszarze nauki. W szczególności zastąpienie ferromagnetyków antyferromagnetykami w procesie zapisu danych jest bardzo obiecującą perspektywą oferującą przede wszystkim dużo większą gęstość i szybkość zapisu oraz odporność na zewnętrzne warunki. Te ważne możliwości stoją u podstaw prac badawczych prowadzonych przez mgr inż. Weronikę Janus.

Rozprawa doktorska przedstawia wyniki badań heterostruktur zawierających antyferromagnetyczne warstwy NiO i CoO. Jest to praca eksperymentalna z niewielkim, ale istotnym wkładem związanym z obliczeniami. Wielowarstwowe układy przygotowano metodą epitaksji z wiązki molekularnej w warunkach ultrawysokiej próżni. W realizacji postawionych zadań badawczych Autorka używała klasycznych i zaawansowanych, synchrotronowych technik pomiarowych. Były to: dyfrakcja rentgenowska XRD, dyfrakcja niskoenergetycznych elektronów LEED, magnetoptyczny efekt Kerra MOKE oraz związane z promieniowaniem X: spektroskopia absorpcyjna XAS, magnetyczny dichroizm kołowy XMCD, magnetyczny dichroizm liniowy XMLD, mikroskopia fotoelektronów XMCDPEEM i XMLDPEEM.

Praca doktorska mgr inż. Weroniki Janus została wykonana na Wydziale Fizyki i Informatyki Stosowanej Akademii Górniczo-Hutniczej im. Stanisława Staszica w Krakowie.

Promotorem rozprawy jest dr hab. Anna Kozioł-Rachwał. Rozprawa składa się z siedmiu rozdziałów poprzedzonych wstępem i jest zakończona spisem najistotniejszych wniosków oraz wykazem literatury. Rozprawa napisana jest w języku polskim i liczy 123 strony.

We Wstępie mgr inż. Weronika Janus poza przedstawieniem motywacji do prowadzonych prac badawczych definiuje główny cel rozprawy. Jest nim wykorzystanie naprężeń wprowadzanych w wytwarzane heterostruktury w celu modyfikacji właściwości magnetycznych antyferromagnetycznych warstw NiO i CoO. Poza tym wymienia metody kontroli naprężeń znane z literatury cytując szereg pozycji bibliograficznych. Pokrótce omawia również zawartość poszczególnych rozdziałów rozprawy.

Autorka rozpoczyna Wstęp od definicji spintroniki: „*Spintronika to dziedzina nauki, która zajmuje się badaniami nad wykorzystaniem spinu elektronu do magnetycznego zapisu informacji.*” Tak zdefiniowane pojęcie spintroniki mocno zawęży jej obszar badań i aplikacji, które są znacznie szersze i które można znaleźć w cytowanej przez Autorkę literaturze nr 1.

Pierwszy rozdział rozprawy jest wprowadzeniem w obszar antyferromagnetyzmu i używanych przez Autorkę materiałów antyferromagnetycznych: tlenku niklu i tlenku kobaltu. W syntetyczny sposób przedstawione zostały najważniejsze informacje dotyczące antyferromagnetycznego uporządkowania materii oraz podstawowe wiadomości o strukturze krystalograficznej i właściwościach magnetycznych NiO i CoO.

W rozdziale drugim mgr inż. Weronika Janus koncentruje się na opisie sposobów umożliwiających kontrolę stanu magnetycznego antyferromagnetyków. Omawia cztery metody modyfikacji magnetyzmu antyferromagnetyków: (i) za pomocą pola magnetycznego zewnętrznego lub pochodzącego od warstwy ferromagnetyka, (ii) poprzez przepuszczanie prądu, (iii) poprzez ultraszybkie optyczne wzbudzenia oraz (iv) przy użyciu inżynierii naprężeń. Każda z zaprezentowanych metod jest zilustrowana schematycznymi rysunkami przedstawiającymi procesy stojące za zmianą kierunku magnetyzacji oraz zaczerpniętymi z literatury wynikami badań. Jest to bardzo ważny rozdział, z jednej strony umożliwiający czytelnikowi zapoznanie się z tematyką przełączania magnetyzacji w materiałach antyferromagnetycznych, a z drugiej - umiejscawiający zaprezentowane w kolejnych rozdziałach wyniki na tle już opublikowanych badań.

Osobny, trzeci rozdział, dotyczy omówienia najważniejszych właściwości podłoża piezoelektrycznego użytego w części przeprowadzonych eksperymentów. Ze względu na dobrze poznane i wykorzystywane w wielu aplikacjach właściwości piezoelektryczne użycie tego typu podłoża jest bardzo dobrym pomysłem. Idea elektrycznej kontroli naprężeń w warstwach, a tym samym kontroli stanu magnetycznego antyferromagnetyków przybliży możliwe szybkie aplikacje tego typu układów.

W kolejnym rozdziale mgr inż. Weronika Janus prezentuje metody doświadczalne użyte w trakcie realizacji pracy doktorskiej. Zaczyna od przedstawienia ogólnych informacji



dotyczących epitaksji i epitaksji z wiązki molekularnej. Następnie omawia komorę ultrawysokiej próżni, w której przygotowywała heterostruktury. Przedstawia również najważniejsze z punktu widzenia prezentowanych w rozprawie wyniki opisy technik eksperymentalnych: XRD, LEED, MOKE, XAS, XMCD, XMLD, XPEEM. W opisach metod doświadczalnych zawarto najważniejsze informacje umożliwiające zrozumienie fizycznych podstaw ich działania oraz interpretacji wyników. Ze względu na objętość pracy oraz dostępność informacji w literaturze poszczególne części nie zostały zbyt mocno rozbudowane. Słusznie wyeksponowane zostały metody synchrotronowe, w szczególności XAS i XMLD, które umożliwiły bezpośrednią charakteryzację właściwości magnetycznych antyferromagnetycznych próbek.

W mojej opinii w początkowej części tego rozdziału powinno znaleźć się więcej szczegółów dotyczących preparatyki próbek. Przykładowo ile wynosiło bazowe ciśnienie w komorze, ile podczas nanoszenia warstw, jakie były typowe czasy nanoszenia warstw, w jaki sposób była skalowana waga kwarcowa. Odpowiedzi na niektóre z tych pytań znajdujemy w kolejnych, prezentujących wyniki częściach rozprawy.

Przy opisie metody XRD Autorka stwierdza, że „*Otrzymane w wyniku pomiaru widmo dyfrakcyjne pokazuje zależność intensywności refleksów dyfrakcyjnych od kąta odbicia (2θ)*”. Kąt odbicia wynosi θ , a kąt 2θ jest kątem między wiązką padającą a odbitą.

Natomiast przy opisie metody XAS pada stwierdzenie, że „*elektron z powłoki rdzenia zostaje wybity powyżej poziomu Fermiego atomu.*” W przypadku atomu nie możemy mówić o poziomie Fermiego.

Następne trzy rozdziały prezentują wyniki pomiarów. Rozdział piąty dotyczy magnetycznych właściwości NiO będącego składnikiem w układzie Fe/NiO/Cr/MgO(001).

Bardzo ważną kwestią, od której Autorka rozpoczyna przedstawianie wyników, jest omówienie ewentualnego oddziaływania pola krystalicznego na rezultaty otrzymane techniką liniowego dichroizmu. Aby wykluczyć możliwość wpływu naturalnego dichroizmu liniowego Autorka przedstawia serię pomiarów XAS w zależności od temperatury, z której wynika, że obserwowany dichroizm jest związany z magnetyzmem warstwy NiO. Kolejne pomiary wykonane dla różnych grubości warstwy Cr oddzielającej tlenek niklu od podłoża MgO dowodzą, że wprowadzane w ten sposób naprężenia w warstwie tlenku powodują zmiany w orientacji momentów magnetycznych antyferromagnetyka. Autorka bada również wpływ grubości tlenku niklu przykrytego warstwą ferromagnetycznego Fe na jego anizotropowe właściwości stwierdzając, że jednoosiowa anizotropia magnetyczna antyferromagnetyka zmniejsza się wraz ze wzrostem jego grubości. W zamian pojawia się jednozrotna anizotropia magnetyczna oraz efekt *exchange bias*.

Ważnym uzupełnieniem badań eksperymentalnych są wyniki symulacji, w których wyznaczono widma XAS dla tlenku niklu. Otrzymane wyniki w funkcji kąta padania wiązki promieniowania X, przy założeniu modelu wielodomenowej budowy NiO z momentami magnetycznymi posiadającymi składową prostopadłą do płaszczyzny próbki, bardzo dobrze odzwierciedlają rezultaty eksperymentów. W ten sposób Autorka wskazała na możliwy scenariusz układu domen magnetycznych w antyferromagnetyku.

Informacje zawarte w tej części rozprawy nasuwają kilka pytań i uwag:



1. Czy podczas osadzania Ni w atmosferze tlenu warstwa Cr nie ulega utlenianiu? Czy było to sprawdzane?
2. Dlaczego pomiarów temperaturowych nie wykonano powyżej temperatury Neela (rys. 5.3)?
3. Czy zmniejszenie sygnału dla przypadku NiO/MgO w $T=390$ K dla największej wartości grubości NiO (rys. 5.5) ma fizyczne uzasadnienie, czy wynika z niepewności pomiarowej?
4. W zależności stałej sieci od grubości warstw Cr (rys. 5.10) powyżej grubości 3,5 nm widoczne jest wyraźne zmniejszenie stałej sieci Cr poniżej wartości dla materiału objętościowego. Czy jest to wynik niepewności pomiarowej, czy rzeczywisty efekt?

Kolejny, szósty rozdział omawia magnetyczne właściwości warstwy NiO osadzonej na warstwach MgO w układzie Fe/NiO/MgO/Cr/MgO(001). Mgr inż. Weronika Janus wykazuje, że podobnie jak w przypadku warstw Cr, również warstwy MgO mogą być użyte do sterowania naprężeniami występującymi w tlenku niklu. W przeciwieństwie do Cr wraz ze wzrostem grubości MgO warstwa NiO początkowo doznaje naprężeń ściskających, a następnie rozciągających. Skutkuje to pojawieniem się magnetycznej anizotropii w płaszczyźnie próbki i obrotem momentów magnetycznych w kierunku prostopadłym do powierzchni wraz ze wzrostem grubości warstw MgO. Autorka prezentuje również wpływ modyfikacji drugiego interfejsu na magnetyzm NiO. Poza danymi z doświadczeń prezentuje także wyniki symulacji pomagających w interpretacji rezultatów otrzymanych w eksperymentach. Osadzenie Fe powoduje pojawienie się sprzężenia wymiennego pomiędzy warstwą ferromagnetyka i antyferromagnetyka, co zostało zobrazowane pomiarami XMCDPEEM i XMLDPEEM. Pomiary te umożliwiły również wyznaczenie orientacji momentów magnetycznych w warstwach Fe i NiO. Ważnym osiągnięciem tych badań jest określenie zmian w morfologii domen magnetycznych w NiO w zależności od odległości od interfejsu z Fe i podłożem MgO.

Warto podkreślić, że dane zaprezentowane w tym rozdziale są podstawą artykułu opublikowanego w *Scientific Reports*, którego pierwszym i korespondencyjnym autorem jest mgr inż. Weronika Janus.

Nawiązując do modelu wynikającego z symulacji, rys.6.9, pojawia się pytanie czy do uzyskania zgodności z wynikami eksperymentu nie wystarczyłoby uwzględnienie w modelu dwu domen z magnetyzacją nachyloną do płaszczyzny NiO, bez dodatkowych domen leżących w płaszczyźnie warstwy?

W ostatnim rozdziale Autorka prezentuje możliwość elektrycznej kontroli właściwości magnetycznych układu Fe/CoO poprzez zastosowanie piezoelektrycznego podłoża PMN-Pt(001). W pierwszym kroku mgr inż. Weronika Janus demonstruje w eksperymentach MOKE utworzenie magnetycznie sprzężonego układu ferromagnetyk/antyferromagnetyk wykazującego efekt *exchange bias*. Badania wpływu naprężeń na magnetyczny stan układu Fe/CoO uwidaczniają istnienie histerezy zależności pola koercji od przyłożonego do piezoelektryka napięcia. Zaobserwowany efekt pozwala na uzyskanie w temperaturze 80 K dwóch istotnie różniących się i stabilnych stanów magnetycznych badanego układu. Rozdział jest z pewnością ważny, a prowadzone badania powinny być kontynuowane w kierunku poszukiwań układów wykazujących opisane właściwości magnetyczne w temperaturze co najmniej pokojowej.



Omówienie zaprezentowanych wyników zostało podsumowane we Wnioskach, gdzie mgr inż. Weronika Janus wymienia w punktach najważniejsze konkluzje rozprawy.

Pracę doktorską zamyka spis literatury liczący 157 pozycji. Są to w większości artykuły opublikowane w prestiżowych periodykach w ostatnich kilku, kilkunastu latach.

Na zakończenie warto zauważyć, że w przedstawionej pracy doktorskiej wytwarzano skomplikowane, wielowarstwowe, w tym klinowe struktury metodą epitaksji z wiązki molekularnej w warunkach ultrawysokiej próżni. Poza wiedzą dotyczącą zjawisk zachodzących w badanych materiałach za wykonaną pracą stoją także teoretyczne przygotowanie i praktyczne umiejętności Autorki obejmujące różne zagadnienia niezbędne w tego rodzaju pracy eksperymentalnej: poczynając od technik i technologii próżniowych, poprzez klasyczne powierzchniowo czułe metody eksperymentalne, a kończąc na zaawansowanych technikach pomiarowych przy wykorzystaniu synchrotronowej wiązki promieniowania X.

Na podkreślenie zasługuje również duża liczba rysunków (ponad 70) zamieszczonych w rozprawie świadcząca między innymi o ilości uzyskanych danych badawczych i tym samym wykonanej pracy eksperymentalnej. Wyniki zawarte w rozprawie zostały opublikowane w dwu artykułach. Jeden we wspomnianym wyżej *Scientific Reports*, drugi - w *APL Materials*. Fakt, że mgr inż. Weronika Janus jest pierwszym i korespondencyjnym autorem w jednej z tych publikacji świadczy o umiejętności prowadzenia pracy naukowej poczynając od przeprowadzenia doświadczeń, poprzez ich analizę i wyciąganie wniosków, i kończąc na upowszechnieniu wyników w postaci naukowego artykułu.

Układ rozprawy jest prawidłowy. Rozdziały tworzą logiczny ciąg - kolejne w części bazują na wcześniej przedstawionych wynikach. Ułatwia to zrozumienie i zagłębienie się w problematykę rozprawy. Rozdziały prezentujące autorskie wyniki badań zakończone są krótkim podsumowaniem. Rozprawa napisana jest w przejrzysty sposób.

Poniżej zamieszczam listę uwag technicznych, na którą składają się między innymi nieprecyzyjne sformułowania, żargon, pomyłki itp.:

- nieprawidłowa kolejność oznaczenia poziomów energetycznych na rys. 4.8,
- „siła sygnału”, „silniej obsadzone”, „widma zebrano” – żargon,
 - w tekście jest rys. 4.12, powinien być 4.13,
- „ilość elektronów”, „ilość pustych stanów”, „ilość fotoelektronów” – obiekty przeliczalne, powinna być liczba,
- na rys. 4.15 jest odmienna konwencja oznaczenia spinowo spolaryzowanych stanów elektronowych od wcześniej używanej (na rys. 4.12),
- przecinki i kropki w zapisie dziesiętnym,
- wykresy (np. rys. 5.4, 5.5) bez oznaczonej niepewności pomiarowej,
- rys. 5.8a i 5.8b (s. 73) - powinno być 5.9,
- rys. 5.9 - brak opisu osi rzędnych i nieprawidłowy opis osi odciętych,
- rys. 5.16: pomieszane oznaczenia kolorów z grubością warstwy NiO w podpisie rysunku i opisie w tekście,
- rys. 5.17 zamiast 5.16 (s. 81),
- dwa rys. 5.19,



- nieprawidłowy numer rysunku: powinno być rys. 6.16 a nie 6.14,
- pomyłone oznaczenia w tekście i na rys. 7.4: pętla czerwona i czarna,
- niewłaściwe jednostki H_c (s.109-110).

Przedstawione powyżej uwagi, które w części dotyczą technicznej strony rozprawy, nie umniejszają naukowej wartości zaprezentowanych wyników, która jest potwierdzona artykułami opublikowanymi w uznanych, międzynarodowych czasopismach. Nieliczne uwagi merytoryczne wymagają głównie doprecyzowania zawartych w rozprawie stwierdzeń. W pracy zaprezentowano rezultaty, które w istotny sposób poszerzają naszą wiedzę dotyczącą możliwości sterowania magnetyzacją antyferromagnetyków poprzez wprowadzanie naprężeń. W mojej opinii rozprawa zawiera szereg nowych wyników ważnych z poznawczego i praktycznego punktu widzenia.

Podsumowując, przedstawiona do recenzji rozprawa doktorska stanowi jednolity opis właściwości magnetycznych modulowanych naprężeniami w heterostrukturach zawierających antyferromagnetyczne tlenki metali przejściowych. Tym samym stanowi oryginalne rozwiązanie problemu naukowego. Stwierdzam, że rozprawa doktorska mgr inż. Weroniki Janus spełnia wymagania określone w ustawie *Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce* i może być dopuszczona do dalszych etapów przewodu doktorskiego.

Dyszard Zdy

