

Warszawa, 31 lipca 2019 r.

Dr hab. Marta Borysiewicz
Wydział Fizyki
Uniwersytet Warszawski
Ul. Pasteura 5
02-093 Warszawa

**Recenzja pracy doktorskiej mgr. Michała Jakuba Grzybowskiego zatytułowanej:
„Electrical Manipulation of the domain structure of antiferromagnetic CuMnAs”**

Praca doktorska pana magistra Michała Grzybowskiego jest poświęcona badaniom wpływu pola elektrycznego na warstwy antyferromagnetyka CuMnAs. Wpisuje się w ważny nurt badań materiałów z jonami magnetycznymi dla spintroniki. Przez ostatnie dwie dekady tematyka ta była zdominowana przez struktury ferromagnetyczne. Kilka lat temu pojawił się koncept zastosowania materiałów antyferromagnetycznych. Ich przewagą jest potencjalnie większa stabilność przechowywania informacji zapisanej lokalnie w namagnesowaniu, dzięki brakowi wypadkowego namagnesowania oraz istotnie mniejszemu polu rozproszonemu. Autor, korzystając ze współpracy między Instytutem Fizyki Polskiej Akademii Nauk a ‘School of Physics and Astronomy’ Uniwersytetu w Nottingham, włączył się w te nowatorskie badania, i dodał do nich swój istotny wkład.

Celem badań było uzyskanie mikroskopowego opisu przełączania antyferromagnetycznego CuMnAs wywołanego elektrycznie. Postawiony cel był ambitny i oryginalny. Punktem wyjścia była obserwacja przełączania się wartości oporu poprzecznego obszarów próbki poddanej działaniu silnych impulsów prądu. Doktorant przeprowadził obrazowanie struktury domenowej badając magnetyczny liniowy dichroizm promieni X oraz widma fotoemisji elektronów, skorelowane z prądową modyfikacją próbki. Zaobserwował zmiany w strukturze domenowej wywołane impulsami prądu i udokumentował przesuwanie się ścian domenowych. Przeprowadził również badania wpływu potencjału na bramce na własności CuMnAs – wykazał małe, ale mierzalne, zmiany oporu tego materiału na skutek polaryzowania bramki. Cel pracy został zrealizowany. Wymagało to od Doktoranta szerokiej wiedzy w dziedzinie, zdolności eksperymentalnych, biegłości w różnych metodach badawczych i - sądząc po wielu próbach pomiarów dichroizmu na próbkach strukturyzowanych - również uporze.

Praca liczy 175 stron, składa się z pięciu rozdziałów i jednego dodatku. Napisana jest po angielsku (British English), ładnym językiem. Strona edycyjna pracy jest bardzo dobra, choć zdarzają się w pracy literówki, błędy gramatyczne i „czeskie błędy” (23 sztuki w sumie). Nie przeszkadza to jednak w lekturze pracy, którą czyta się z przyjemnością.

Pierwszy rozdział to bardzo obszerny, liczący 42 strony, wstęp (Introduction). Zawiera informacje o własnościach antyferromagnetyków, przedstawia zjawiska, które pozwalają na obserwację struktury namagnesowania, i które są eksploatowane później w pracy. Omówiono zjawisko anizotropowego magnetooporu oraz absorpcję promieniowania X i towarzyszące jej reguły wyboru. Zamieszczono też opis oddziaływania spinowo-orbitalnego i wprowadzenie do mechanizmu kontroli kierunku wektora namagnesowania prądem. Po krótko omówiony został badany materiał CuMnAs, w szczególności przywołano wyniki (w tym takie, których Autor jest współautorem)

pokazujące elektryczne przełączanie stanu antyferromagnetyka. W podrozdziale 'metody' opisano wszelkie wykorzystane techniki pomiarowe oraz elementy technologii otrzymywania próbek, z czasami z niewystarczającym stopniem szczegółowości. Skutkuje to koniecznością uzupełniania i opisywania szczegółów doświadczalnych w dalszej części pracy, przy okazji omawiania wyników. Nie jest to ważki zarzut, ale struktura pracy byłaby bardziej czytelna, gdyby informacje dotyczące metod były kompletne i znajdowały się w jednym miejscu. Brakuje mi osobnego rozdziału poświęconego próbkom, o których częściowe informacje czytelnik dostaje przez całą pracę, od wstępu aż do dodatku. Uwaga szczegółowa: zauważyłam drobną pomyłkę w opisie czasowej ewolucji wektora namagnesowania: strzałki na rysunku nr 1.25 nie odpowiadają członom we sąsiadującym wzorze, a ostatni człon wzoru, który miał tłumić wektor namagnesowania, niefortunny przewiduje jego liniowy (w czasie) wzrost.

W drugim rozdziale przedstawiono szczegółowe omówienie metodyki obrazowania struktury domenowej przy pomocy badania magnetycznego liniowego dichroizmu promieniowania X, oraz mikroskopii fotoemisyjnej, wraz z wynikami eksperymentów przeprowadzonych na CuMnAs. Pokazano mapowanie widma absorpcji promieni X dla dwóch kierunków ich padania (wzdłuż [100] i [110]), ujawniające kontrast magnetyczny w płaszczyźnie warstwy, związany ze strukturą domenową CuMnAs (domeny o rozmiarach submikronowych). Następnie wykorzystano tę metodę do obrazowania stanu próbki po przepuszczeniu przez nią impulsów prądu, o gęstości na tyle dużej, aby zmienić stan namagnesowania. Udokumentowano zmiany kontrastu magnetycznego wywołanego impulsami prądu. Przeprowadzono analizy statystyczne ewolucji magnetycznego liniowego dichroizmu wybranych obszarów próbki. Równoległe z obrazowaniem przeprowadzono pomiary oporu poprzecznego, który - pod nieobecność zewnętrznego pola magnetycznego - niesie w sobie informację o anizotropii ośrodka. Eksperyment poprzedzono rachunkami rozkładu potencjału w badanej próbce, co ujawniło obszary silnego pola elektrycznego i pokazało kierunek przepływu impulsów. Wzajemnie prostopadłe impulsy prądu „przełączały” wartości oporu poprzecznego pomiędzy dwoma stanami. Zaobserwowany efekt był, co prawda, niewielki (na poziomie ułamka Ω), ale jednoznacznie związany z obecnością poprzedzającego impulsu. To nowatorskie i piękne wyniki z punktu widzenia fizyki. Sądzę, że są też bardzo ważne dla potencjalnego zastosowania tych materiałów. Mam zastrzeżenie dotyczące analizy danych map zmian intensywności obrazu dichroizmu (XMLD) dla wzajemnie prostopadłych impulsów, otrzymanymi dla różnych wartości prądów. Porównanie dotyczy uśrednionych map o różnej liczebności (8 wobec 3) i sam Autor zauważa, iż może to być źródłem błędu. Lepiej byłoby pokazać dane uśrednione dla jednakowej liczby map. Nie rozumiem, dlaczego podsumowujący rozdział rysunek 2.26, nie zawiera punktów gęstości prądów, dla których mapy znajdują się na sąsiedniej stronie (rys. 2.25). Dodatkowo, mylący jest sposób prezentacji danych na rysunku 2.26 – dobór dwóch osi pionowych (XML i oporu) sugeruje, że zmiana XMLD jest proporcjonalna do zmiany oporu, co jest wnioskiem nieuprawnionym. Z eksperymentu wynika, tylko że jedno i drugie zmienia się monotonicznie z gęstością prądu. Okazuje się, że w publikacji temu poświęconej, jest dodatkowy wykres, dokumentujący kwestionowaną przeze mnie proporcjonalność. Dobrze byłoby umieścić go również w tej pracy. Pomyłka w rys.2.13 – kierunki wiązki X w podpisie i na rysunku są różne.

Kolejny rozdział poświęcony jest próbkom zminiaturyzowanym, których wymiar liniowy jest około 10 razy mniejszy od tych uprzednio zbadanych (obszar badany rzędu $1 \mu\text{m}^2$). Próbkę tę Doktorant wykonał z zastosowaniem elektronolitografii i mokrego trawienia. Z powodów nie do końca jasnych na tym etapie, dla tej serii próbek zaobserwowano znacznie większe domeny.

Pozwoliło to na obserwację ścian domenowych i ich ewolucji. W szczególności, prześledzono cykliczne przesuwanie się ściany domenowej wywołane impulsami prądu o przeciwnych zwrotach. Zaproponowano prosty model, który jakościowo wyjaśnia obserwowany efekt. Pokazano też wynik negatywny, w którym nie zaobserwowano cyklicznych zmian amplitudy dichroizmu kołowego pod wpływem impulsów elektrycznych. Również opór poprzeczny takich cyklicznych zmian był w tej sytuacji pozbawiony. Potwierdza to zaobserwowaną wcześniej korelację między wynikami oporu poprzecznego i magnetycznego liniowego dichroizmu promieni X.

W rozdziale czwartym, drugim co do wielkości (40 stron), Autor omawia rezultaty badań wpływu potencjału bramki na własności CuMnAs. Wyniki poprzedza przypomnienie podstawowych pojęć opisujących obwody z elementami pojemnościowymi. Eksperymenty bramkowania przeprowadzono w dwóch konfiguracjach, tworząc bramkę poprzez cienką warstwę dielektryka albo ciecz jonową, na warstwach o grubościach 10 nm lub 40 nm, zarówno poddanych strukturyzacji, jak i bez niej. W każdym przypadku warstwa CuMnAs była przykryta cienkim tlenkiem aluminium. W pierwszej konfiguracji, wykonano próbne kondensatory, dla których oszacowano stałą dielektryczną używanego tlenku hafnu. Następnie przygotowano próbkę, której badany obszar został „zbramkowany” za pomocą niewielkiej elektrody bezpośrednio nad nim. W przeprowadzonym pomiarze, przez próbkę płynął stały prąd, a do bramki przykładano krótkie (5 ms) impulsy napięcia mierząc jednocześnie napięcie na kontaktach podłużnych próbki, w takt tych impulsów. Zaobserwowano pojawienie się niewielkiego ($\sim 0.2 \mu\text{V}$), mocno zaszumionego napięcia, gdy bramka była spolaryzowana. Stwierdzono, że wielkość napięcia zależała monotonicznie od wielkości prądu stałego płynącego przez próbkę, tym silniej im wyższa była temperatura. Ten efekt przypisano upływności bramki oraz możliwym gradientom temperatury (zwrot prądu stałego nie był zmieniany). Innymi słowy nie udało się pokazać zmiany własności CuMnAs. Cel ten został osiągnięty podczas badań z zastosowaniem cieczy jonowej, mimo że jej użycie nie przyniosło istotnego wzrostu pojemności na jednostkę powierzchni w stosunku do tlenkowej warstwy dielektrycznej. Tym razem eksperyment został skonfigurowany inaczej: tandem źródło prądowe – nanowoltomierz został wykorzystany do pomiaru oporu próbki, a bramka była cyklicznie polaryzowana ze źródła napięciowego. Zaobserwowano niewielką zmianę oporu próbki w takt cykli napięcia na bramce dla dwóch próbek niestrukturyzowanych. Otrzymanie próbek strukturyzowanych wiązało się z dużym nakładem pracy – okazało się, że ciecz jonowa reaguje z warstwą CuMnAs i pierwsze próbki uległy zniszczeniu. Aby móc prowadzić badania, trzeba było wykonać nowe serie próbek, dokładając kolejne etapy do i tak wieloetapowej litografii. Próbkę strukturyzowaną zbadano w jeszcze innej konfiguracji: przepuszczano przez nią prąd przemienny i przy pomocy woltomierza fazoczułego mierzono rzeczywistą i urojoną część spadku napięcia podłużnego. Obie części pokazywały porównywalne niewielkie pulsowanie napięcia zależne od napięcia na bramce. Obserwacje zmiany oporu pod wpływem napięcia bramki to ważny wynik tej części pracy i sukces eksperymentalny. Jednakże, zastosowanie różnych metod pomiarowych dla różnych próbek nie ułatwia syntetycznego spojrzenia na kluczowe czynniki decydujące o tej obserwacji. Pouczającym i ugruntowującym poczynione obserwacje, byłoby porównanie wyników różnych metod dla jednej próbki, albo różnych próbek jedną metodą. Rozumiem jednak, że to pionierskie prace i przewidziana jest ich kontynuacja. W tej części brak mi komentarza na temat roli cienkiej warstwy dielektryka AlO_x , który zawsze jest obecny na badanej warstwie i stanowi dodatkową warstwę dielektryczną. Czy jego obecność brano pod uwagę wyznaczając stałą dielektryczną osadzanego HfO_2 ? Czy obserwowano jakieś hysteretyczne zachowanie, z którego znany jest ten dielektryk?

Ostatnia część rozdziału dotyczącego bramkowania zawiera wyniki pomiarów zjawiska Halla badanych warstw. Pomiar przeprowadzono dla różnych temperatur, dla dwóch próbek. Praca nie zawiera bezpośrednich wyników pomiarów zależności tensora oporności od pola magnetycznego, a szkoda. Pokazano natomiast parametry wynikające z dopasowania modelu 1-nośnikowego – koncentrację dziur na poziomie kilka $\cdot 10^{22} \text{cm}^{-2}$ oraz niską ruchliwość na poziomie kilku cm^2/Vs . W ramach niepewności pomiarowej nie zaobserwowano zmiany tych parametrów pod wpływem bramkowania.

Ostatni (piąty) rozdział zawiera podsumowanie pracy, najważniejsze osiągnięcia i wnioski dotyczące przyszłych badań. Rozdział ten jest moim zdaniem zbyt skromny. Wobec ogromnego materiału doświadczalnego, jaki zgromadzony został w tej pracy, warto byłoby przeprowadzić dyskusję wszelkich wyników, biorąc pod uwagę różnorodność stosowanych próbek (ze strukturyzacją i bez, na buforze GaP i GaAs, o różnych grubościach, z różnymi dielektrykami).

Powyższe uwagi nie obniżają w istotny sposób wartości pracy, która jest pionierska i trudna. Doktorant zrealizował postawione ambitne cele. Przedstawione w pracy wyniki oceniam bardzo wysoko.

Mgr Grzybowski jest autorem 6 publikacji, z czego 5 powstało w trakcie studiów doktoranckich, w latach 2016-2019. Trzy z nich, opublikowane w Science, Nature Nanotechnology i Physical Review Letters, bezpośrednio dotyczą wyników przedstawionych w rozprawie. W ostatniej pracy Doktorant jest pierwszym autorem. Pan magister Grzybowski wielokrotnie prezentował swoje wyniki: przedstawił 7 plakatów na międzynarodowych konferencjach, wygłosił 4 wystąpienia ustne i powiedział dwa seminaria. Jak na tak młodego stażem naukowca, jest to bardzo wynik wybitny.

Stwierdzam, że przedstawiona do recenzji rozprawa doktorska w pełni spełnia ustawowe i zwyczajowe wymogi, stawiane rozprawom doktorskim i wnioskuje o dopuszczenie mgr. Michała Jakuba Grzybowskiego do publicznej obrony pracy doktorskiej. Jednocześnie, doceniając, udokumentowany znakomitymi publikacjami, istotny wkład w dziedzinę spintroniki antyferromagnetycznej, wnioskuje o wyróżnienie pracy doktorskiej pana mgr. Grzybowskiego.



Dr hab. Marta Borysiewicz