

Prof. dr hab. Tomasz Stobiecki

Kraków, 30. 07. 2019

Wydział Fizyki i Informatyki Stosowanej AGH

Katedra Fizyki Ciała Stałego

e-mail:stobieck@agh.edu.pl

Recenzja

pracy doktorskiej mgra Michała Jakuba Grzybowskiego

Electrical manipulation of the domain structure of antiferromagnetic CuMnAs

Promotor: prof. dr hab. Maciej Sawicki Instytut Fizyki PAN

Promotor pomocniczy: Dr. Peter Wadley School of Physics and Astronomy University of Nottingham

Wybór tematu i cel pracy

Praca doktorska pana mgra Michała Jakuba Grzybowskiego dotyczy badań doświadczalnych antyferromagnetycznego związku CuMnAs otrzymanego metodą naparowywania z wiązki molekularnej (MBE – Molecular Beam Epitaxy) w postaci epitaksjalnych cienkich warstw naniesionych na monokrystaliczne podłoża GaAs(001) lub GaP(001), które następnie poddano procesom mikro/nano-strukturyzacyjnym celem wytworzenia mikro/nano-rozmiarowych urządzeń elektrycznych zdolnych do badania odwracalnej zmiany kierunku spinów podsieci antyferromagnetyka za pomocą prądu elektrycznego, wykorzystując sprzężenie spinowo orbitalne typu Néela. Dzięki generowaniu indukowanego prądem o gęstości rzędu 10^6 Acm^{-2} pól wewnętrznych, których znak zmienia się z okresowością sieci antyferromagnetycznej, możliwe jest przełączanie elektryczne w temperaturze pokojowej między stabilnymi konfiguracjami cienkowarstwowych antyferromagnetyków o centrach symetrii inwersyjnej, do których należy związek CuMnAs. Możliwy więc jest zapis i odczyt elektryczny, a przechowywany stan magnetyczny jest niewrażliwy na zakłócenia przez zewnętrzne pola magnetyczne, co jest zaletą antyferromagnetyków. Opisany eksperyment został zrealizowany praktycznie i opisany w pracy zespołów: Institute of Physics, Academy of Sciences of the Czech Republic, School of Physics and Astronomy, University of Nottingham UK, IGS Research, Tarragona, Spain, Department of Materials, ETH Zürich, Switzerland, K. Olejnik, et al. *Antiferromagnetic CuMnAs multi-level memory cell with microelectronic compatibility. Nature Communications*, **8**, (2017)). Dodatkową bardzo istotną własnością antyferromagnetyków, przewidzianą teoretycznie (np. J. Chęciński et al. *Antiferromagnetic nano-oscillator in external magnetic fields, Phys. Rev. B* **96**, 174438 (2017)), jest możliwość osiągnięcia THz dynamiki oscylacji spinów. Tak więc problematyka badana i dyskutowana w pracy doktorskiej mgra M.J. Grzybowskiego jest niezwykle atrakcyjna z punktu widzenia zastosowań nowych elementów elektroniki spinowej w technikach informatyczno-telekomunikacyjnych i komputerowych.

Celem podstawowym rozprawy doktorskiej M.J. Grzybowskiego jest zbadanie procesu przełączania antyferromagnetycznego, poprzez równoczesną obserwację antyferromagnetycznej struktury domenowej i odpowiedzi od podawanych impulsów prądowych, na

strukturach/urządzeniach umożliwiającym zarówno obserwacje wielodomenową jak również od pojedynczej ściany domenowej. Doktorant, dzięki zastosowaniu techniki magnetycznego linowego dichroizmu promieni X (XMLD - X-Ray Magnetic Linear Dichroism) oraz sprzężonego z nim elektronowego mikroskopu fotoemisyjnego (PEEM - Photoemission Electron Microscopy) obserwuje zmiany w strukturze domenowej wywołane przepływem prądu. Choć to nie wynika z tytułu pracy doktorskiej M.J. Grzybowski dodatkowo bada wpływ pola elektrycznego na cienkie warstwy CuMnAs w konfiguracji analogicznej do tranzystora polowego. Motywacją dla niego do przeprowadzenia tych badań jest sprawdzenie czy pole elektryczne, jak to ma miejsce w przypadku ferromagnetycznych złącz tunelowych, będzie wspomagać efekt przełączania obniżając moc potrzebną do zapisu stanów pamięciowych.

Aby zrealizować tak ambitne cele doktorant musiał opanować wiele bardzo zaawansowanych procedur preparacyjnych oraz pomiarowych, takich jak: mikro/nano-strukturyzacja optyczna i elektronowa (projektowanie masek oraz żmudna i wielogodzinna praca w pomieszczeniach czystych), nanoszenie chemiczne techniką ALD (Atomic Layer Deposition) warstw dielektrycznych, pomiary ekstremalnie niskich sygnałów elektrycznych, pomiary synchrotronowe – XMLD i PEEM. Pomiary synchrotronowe wykonywał na Diamond Light Source I06 w Harewell Campus, Didcot, Oxfordshire, a warstwy CuMnAs nanosił techniką MBE na Uniwersytecie w Nottingham, mikro/nano-strukturyzacje oraz pomiary elektryczne realizował częściowo na Uniwersytecie w Nottingham i w IF PAN.

Doktorant jest współautorem trzech publikacji ściśle związanych z tematem doktoratu, wszystkie opublikowane w bardzo wysoko indeksowanych czasopismach: Science (2016), Physical Review Letters (2017) (w tej pracy jest pierwszym autorem) i Nature Nanotechnology (2018).

Podsumowując ocenę celów rozprawy doktorskiej mgra M.J. Grzybowski, pragnę podkreślić, że tematyka, metody badawcze oraz zastosowanie bardzo zaawansowanych nanotechnologicznie metod wytwarzania i charakteryzacji próbek są naukowo i aplikacyjne bardzo aktualne.

Treść pracy i uwagi ogólne

Przedstawiona rozprawa doktorska napisana jest w języku angielskim liczy 176 stron, ma tradycyjny układ i została podzielona na pięć rozdziałów, szósty stanowią załączniki, w których autor omawia szczegóły eksperymentalne, konieczne dla lepszego zrozumienia przeprowadzonych badań. Mimo, że doktorant opublikował trzy prace ściśle związane z doktoratem, nie zdecydował się je włączyć do książki doktorskiej tylko ponownie omówił wyniki badań, poddając je ocenie w tym przypadku recenzentów doktoratu.

We wstępie (rozdział *Introduction* liczy 42 strony i 19 podrozdziałów) doktorant omówił wiele pojęć i informacji podstawowych wprowadzających czytelnika w tematykę zjawisk i metod jakie stosował w badaniach. W podrozdziale *1.2.3 Anisotropic magnetoresistance (AMR)* omawia zjawisko anizotropowego oporu w oparciu o fenomenologiczny model tensora oporu właściwego metali ferromagnetycznych (*J.P. Jan, Galvanomagnetic and thermomagnetic effects in metals, Solid State Phys. Adv. Res. Appl. 5, 1-96, (1957)*) i zakłada, że opory właściwe podłużny i poprzeczny zależą podobnie jak dla ferromagnetyka czyli od kąta pomiędzy kierunkiem wektora magnetyzacji (przypadek ferromagnetyka) lub osią uporządkowanego kierunku spinów w przypadku antyferromagnetyka względem kierunku wektora gęstości prądu. Jak wiemy, siłą efektu AMR jest

tzw. przyrost oporu właściwego $\Delta\rho=\rho_{\parallel}-\rho_{\perp}$ wielkość zależna od materiału, uporządkowania strukturalnego, grubości warstwy, etc. Autor rozprawy nie wyjaśnia jaka jest natura i pochodzenie zjawiska AMR w CuMnAs, pisze powołując się na doniesienia literaturowe, że niekryształiczny AMR jest dominujący. Takie stwierdzenie do zrozumienia natury zjawiska AMR w antyferromagnetyku jest dla mnie niewystarczające i proszę w dyskusji podczas obrony wyjaśnić pochodzenie zjawiska AMR w antyferromagnetyku.

Badania synchrotronowe w sposób klarowny i wyczerpujący doktorant omawia w następujących podrozdziałach wstępu: w 1.8.2 znajdujemy opis synchrotronu Diamond Light Source Harewell Campus, Didcot, Oxfordshire oraz stacji końcowej I06 do przeprowadzenia eksperymentu XMLD-PEEM, podstawy fizyczne zjawiska XMLD/XMCD w 1.2.4, metody absorpcji/detekcji promieniowania X w zależności od grubości próbki omawia w 1.8.3, podstawy fizyczne zjawiska mikroskopii fotoemisyjnej i zasady obrazowania za pomocą mikroskopu PEEM w 1.8.4.

Krótki podrozdział 1.3 poświęca spintronice antyferromagnetycznej uwzględniając również wybrane przez niego trafnie niektóre prace dotyczące: układów hybrydowych metal ciężki/ferromagnetyk/antyferromagnetyk, ferromagnetyków przełączanych spinowo-orbitalnym momentem siły w temperaturze pokojowej NiMnSb, w niskich temperaturach (Ga, Mn)As oraz niektórym antyferromagnetykom tlenkowym. Tego rodzaju przegląd literatury będzie zawsze subiektywny niemniej został on trafnie wyważony zwracając uwagę czytelnika na aktualnie prowadzone kierunki badań w spintronice antyferromagnetycznej.

Konsekwencje oddziaływania spin-orbita, powodujące polaryzację spinową prądu i role sieci krystalicznej doktorant omawia w podrozdziale 1.4. Z kolei możliwość kontrolowania stanów wysokich i niskich w zapisie/odczytanie rezystancji poprzecznej (pochodzącej od efektu AMR) pomiędzy kierunkami osi krystalicznych CuMnAs i towarzyszące temu obrazy PEEM-XMLD antyferromagnetycznej struktury domenowej po zadaniu impulsów prądu o gęstości $6 \times 10^6 \text{Acm}^{-2}$ trwających 50 ms doktorant dyskutuje w sekcji 1.5.

Dynamikę podsieci antyferromagnetycznych oraz występowanie Néelowskiego polowego momentu siły podsieci w CuMnAs mgr M.J. Grzybowski opisał w podrozdziale 1.6.

Podstawowe właściwości warstw CuMnAs doktorant omówił w podrozdziale wstępu 1.7, są to: struktura, temperatura Néela ($T_N = 470 \pm 5 \text{K}$) wyznaczona na podstawie temperaturowej dyfrakcji neutronów, temperaturowe zależności oporu elektrycznego i hallowskiego. Dane te pochodzą od zespołu z Uniwersytetu w Nottingham, z którym współpracuje i gdzie część swoich badań wykonał, zostały one opublikowane w pracy *P. Wadley, et al. Antiferromagnetic structure in tetragonal CuMnAs thin films. Scientific Reports, 5:17079, (2015).*

Pomiary przewodnictwa elektrycznego i przełączania indukowanego prądem, dla mikro-/nanostruktur, to klasyczne metody stosowane w badaniach elementów spintronicznych działających na sygnałach pochodzących od AMR, SMR (Spin-Magnetoresistance), AHE (Anomalous Hall Effect), SHE (Spin Hall Effect), SD (Spin Diode), czy SOT-FMR (Spin Orbit Torque – Ferromagnetic Resonance) doktorant wykonywał w IF PAN i na Uniwersytecie w Nottingham, robił je ze znanostwem i szczególną starannością, opisał w podrozdziale 1.8.1 i w załącznikach: 6.2, 6.2.1 i 6.2.2, w których znajdujemy wiele ważnych szczegółów technicznych i metodycznych dotyczących miernictwa impulsowych pomiarów przełączania.

Wytwarzanie mikro-/nanostruktur w pomieszczeniach czystych wykonywał mgr M.J. Grzybowski osobiście w metodami litografii optycznej i elektronowej w IF PAN i na Uniwersytecie w Nottingham. Wiem z własnego doświadczenia i z pracy moich współpracowników i doktorantów, że optymalizacja procesu wytworzenia nanostruktury dla danego materiału to żmudna praca, wymagająca wielu dni i godzin aż do momentu opracowania rutynowych procedur. Procesy te doktorant opisał w podrozdziałach 1.8.5 oraz w załączniku 6.3 zatytułowanym recepta na proces litografii elektronowej.

Od rozdziału drugiego (*Imaging current-induced switching of CuMnAs*) mgr M.J. Grzybowski opisuje i dyskutuje otrzymane przez siebie wyniki badań, zaczynając od eksperymentów zmian w obrazach antyferromagnetycznej struktury domenowej warstw CuMnAs pod wpływem prądu przełączania. Na początku wyjaśnia powstawanie kontrastu magnetycznego (I_{asym}) w eksperymencie synchrotronowym XAS/XMLD na jonach Mn^{+2} (podrozdział 2.1), który następnie zastosowany w mikroskopie PEEM tworzy obraz domenowy po zastosowaniu odpowiedniej obróbki obrazu celem wzmocnienia kontrastu magnetycznego (podrozdział 2.2). Podstawowe wyniki równoczesnego przełączania z obserwacją struktury domenowej autor doktoratu opisuje w podrozdziale 2.3 pracy doktorskiej wcześniej je publikując: *M. J. Grzybowski et al. Imaging Current-Induced Switching of Antiferromagnetic Domains in CuMnAs, Physical Review Letters 118, 057701 (2017)*, praca cytowana 33 razy.

Do najważniejszych osiągnięć uzyskanych przez doktoranta, w mojej opinii, należy zaliczyć:

- zgodność między zmianami kontrastu magnetycznego XMLD a zmianami względnej rezystancji poprzecznej (R_{xy}) (Fig. 2.21, PRL Fig. 2) generowanej impulsami prądu o gęstości 6.1 MAcm^{-2} ,
- wykazanie, że efekt zmian kontrastu XMLD jest niejednorodny przestrzennie,
- wykazanie, że im większa gęstość prądu w impulsie tym większe zmiany sygnału XMLD (Fig. 2.24 i 2.26 PhD, PRL Fig. 2h i Fig.4),
- wykazanie, że pomiary PEEM/XMLD udowadniają wprost efekt przełączanie momentów podsieci antyferromagnetyka CuMnAs wywołany indukowaniem przez prąd Néelowskiego spinowo-orbitalnego momentu siły.

W sposób oczywisty doktorant swoje zainteresowania skierowuje na próby obserwacji efektów przełączania przez pojedynczą domenę, które to eksperymenty opisał w rozdziale 3. *Small devices to achieve single domain control*. Z punktu widzenia zastosowań manipulacje przełączania na pojedynczej domenie są ważne ze względu na miniaturyzację komórek pamięci. Stwierdził, że pożądane jest wytwarzanie mniejszych struktur (ok. $1 \mu\text{m}$) zdolnych do manipulacji na magnetycznie jednorodnym obszarze. Wcześniej, celem nabycia doświadczenia, eksperymentował na nanostrukturach o większych rozmiarach $10 \mu\text{m}$ uzyskując ruch ścian domenowych wywołany zmianą kierunku polaryzacji prądu, wyniki opublikował we współautorskiej pracy: *P. Wadley, S. Reimers, M. J. Grzybowski, et al. Current-polarity dependent manipulation of antiferromagnetic domains, Nature Nanotechnology 13, 362-365 (2018)*, cytowana 13 razy. Struktury o rozmiarach $1 \mu\text{m}$ doktorant wykonał litografią elektronową na warstwie CuMnAs o grubości 40 nm hodowanej na podłożu GaP wykazującej większe domeny w porównaniu do 80 nm CuMnAs hodowanych na GaAs. Podłoże GaP, jak stwierdził, zapewnia lepsze dopasowania sieciowe warstwy CuMnAs gwarantując dobrą jakość hodowanej warstwy o dobrze wykształconej anizotropii dwuosiowej. Doktorant udany eksperyment

synchrotronowy XMLD-PEEM przeprowadził w maju 2018 roku na próbce GaP(001)/40 nm CuMnAs oznaczonej RC84c_4 (wcześniej 5 prób bez powodzenia ze względu uszkodzenia elektrostatyczne wytworzonych struktur). Nie uzyskał powtarzalnego i odwracalnego przełączania pojedynczej domeny impulsami prądu w zdefiniowanym litograficznie obszarze, potrafił jednak zmieniając gęstość prądu w zakresie od 27 MAcm^{-2} do 31 MAcm^{-2} wyginać i prostować 180° ścianę domenową. Doktorant podaje prawdopodobne techniczne powody na nieskuteczne wytworzenie wyizolowanej pojedynczej domeny nie dyskutując mechanizmów fizycznych i rozmiarowych powstawania struktury domenowej w epitaksjalnych warstwach CuMnAs, proszę o dyskusję tego problemu podczas obrony.

Mgr M.J. Grzybowski uznał, z pewnością pod namową promotora, że wspomaganie procesu przełączania domenowego warto zbadać w obecności pola elektrycznego, gdyż obniża ono, zastępując prąd, ilość energii potrzebnej na przełączenie. Fakt ten jest skutecznie realizowany w pamięciach STT-RAM (Spin Transfer Torque-RAM) magnetycznych złącz tunelowych, w których anizotropię magnetyczną można łatwo regulować napięciem. Kolejną uzasadnioną teoretycznie motywacją są, ostatnio publikowane doniesienia, o możliwości występowania topologicznego przejścia metal-izolator, które może wpływać na uporządkowanie antyferromagnetyczne (reorientacje wektora Néela) w CuMnAs. Dlatego doktorant słusznie decyduje się na badania wpływu pola elektrycznego na anizotropię warstw CuMnAs w konfiguracji tranzystora polowego, regulując pole elektryczne napięciem bramki. Problem przyłożenia odpowiednio dużego pola elektrycznego jest nietrywialny zarówno dla metody ciała stałowej (konieczna wysokiej jakości bariera dielektryczna), jak i cieczy jonowej (prawdopodobna reakcja chemiczna). Doktorant do badań podchodzi bardzo logicznie i systematycznie, najpierw szacuje efekt otrzymując istotnie większe wartości dla metody jonowej niż ciała stałowej, następnie wytwarza struktury na bazie dwóch grubości warstwy CuMnAs 10 nm i 40 nm. W eksperymencie tranzystorowym otrzymał zbyt duży prąd upływu, z powodu małej pojemności struktury, dlatego nie otrzymał rozstrzygającej odpowiedzi na zmiany rezystancji w funkcji napięcia bramki dla badanych kierunków krystalicznych 40 nm warstwy CuMnAs. Natomiast zmiany rezystancji w eksperymentach cieczy jonowej dla 10 nm warstwy CuMnAs dały zauważalne zmiany rezystancji w pomiarach na warstwie i na strukturze a otrzymane wyniki były dość dobrze zgodne z wyliczeniami. Moim zdaniem, co również przyznaje doktorant na podstawie przeprowadzonych prób, mierzone zmiany rezystancji są małe na poziomie szumów, Jego zdaniem dalsze udoskonalenia są możliwe. Pozostaje otwarte pytanie czy opłacalne w przypadku CuMnAs? Chętnie usłyszę komentarz w czasie dyskusji.

Rozprawę doktorską mgr M.J. Grzybowski kończy dobrze zredagowanym podsumowaniem i uwagami na przyszłe eksperymenty.

Układ treści pracy jest prawidłowy, rozdziały zostały ułożone logicznie, forma graficzna bardzo staranna. Nie zauważyłem poważniejszych błędów i pomyłek, jedynie brak jednostek pod rysunkiem Fig. 1.32, str. 45. Na szczególne podkreślenie zasługuje bardzo obszerny a zarazem bardzo staranny dobór pozycji literaturowych odpowiedni do tematu rozprawy.

Ocena rozprawy i uzasadnienie wyróżnienia

Podsumowując stwierdzam, że praca doktorska mgr Michała Jakuba Grzybowskiego *Electrical manipulation of the domain structure of antiferromagnetic CuMnAs* zawiera bardzo

interesujące i oryginalne wyniki, doktorant wykazał się dużą wiedzą z zakresu fizyki ciała stałego i bardzo dobrą orientacją w problematyce antyferromagnetycznej spintroniki, zdolnościami eksperymentalnymi i wnikliwą interpretacją wyników pomiaru. Na szczególne wyróżnienie zasługuje mądre i logiczne planowanie eksperymentu, podejmowanie trudnych wyzwań, do których zaliczam równoczesne pomiary synchrotronowe XMLD-PEEM połączone z impulsowymi pomiarami dynamiki przełączania.

Z całą stanowczością chciałbym podkreślić, że cele rozprawy doktorskiej zostały osiągnięte. Na szczególne uwagę zasługują następujące oryginalne wyniki:

- obrazowanie za pomocą pomiarów synchrotronowych XMLD-PEEM zmian zachodzących w antyferromagnetycznej strukturze domenowej pod wpływem impulsów prądu,
- uzyskanie dobrej zgodności między zintegrowanym sygnałem XMLD-PEEM a równocześnie mierzonymi poprzecznymi zmianami rezystancji po zastosowaniu impulsów prądowych o zmiennej polaryzacji,
- zademonstrowanie przestrzennej niejednorodności indukowanego prądem przełączania w CuMnAs,
- wykazanie potencjalnych możliwości sterowania i przełączania impulsami prądu pojedynczą domenę jak również ścianę domenową w submikronowych strukturach warstwy CuMnAs.

Pragnę podkreślić, o czym szczegółowo pisze powyżej, doktorant ma na swoim koncie trzy współautorskie publikacje ściśle związane z pracą dokorską w jednej opublikowanej w Physical Review Letters jest pierwszym autorem. Według bazy Web of Science, za cały swój dorobek publikacyjny (6 publikacji) ma 361 cytowań, bez autocytowań 358.

Biorąc pod uwagę bardzo nowatorskie wyniki, bardzo wnikliwe i krytyczne ich opracowanie w formie publikacji i rozprawy doktorskiej stawiam wniosek o wyróżnienie pracy doktorskiej pana mgr Michała Jakuba Grzybowskiego zatytułowanej: *Electrical manipulation of the domain structure of antiferromagnetic CuMnAs*.

Wniosek końcowy

Na podstawie przeprowadzonej oceny rozprawy doktorskiej stwierdzam, że spełnia ona z nadmiarem wymagania ustawy z dnia 14 marca 2003 r. o stopniach naukowych i tytule naukowym oraz o stopniach i tytule w zakresie sztuki (Dz. U. Nr 65, poz. 595, z późn. zm.) i stawiam wniosek do Rady Naukowej Instytutu Fizyki PAN w Warszawie o dopuszczenie pana mgr Michała Jakuba Grzybowskiego do publicznej obrony.

